

**DIE SYNERGISTISCHE WIRKUNG
DER WASSERPARAMETER , TEMPERATUR ,
SAUERSTOFFGEHALT UND STRÖMUNG AUF DAS
AKKUMULATIONSVERHALTEN DES SCHWERMETALLS
QUECKSILBER (HgCl_2) IN VERSCHIEDENEN
KARPFENORGANEN (*CYPRINUS CARPIO* L)**

AYFER YEDILER

1986

Disbui. München



Die synergistische Wirkung der Wasserparameter,
Temperatur, Sauerstoffgehalt und Strömung auf
das Akkumulationsverhalten des Schwermetalls Quecksilber
(HgCl_2) in verschiedenen Karpfenorganen (*Cyprinus carpio* L.)

Dissertation an der Fakultät für Biologie der
Ludwig-Maximilians-Universität München
vorgelegt von:

Ayfer Yediler
aus Eskişehir/Türkei

Juni 1986

1. Berichterstatter: Prof. Dr. J. Jacobs

2. Berichterstatter: Prof. Dr. O. Siebeck

Tag der mündlichen Prüfung: 17.12.1986

ABKÜRZUNGEN

MAC	Maximum admissible concentration
NG	Naßgewicht
TG	Trockengewicht
TS	Trockensubstanz
s	Standardabweichung der Stichprobe
P	Wahrscheinlichkeit
r	Korrelationskoeffizient der Stichprobe
α	Irrtumswahrscheinlichkeit
G	Grenzwert
Z	Zielwert
Q_{10}	Vant't Hoff. Temperaturkoeffizient
SAQ	Sum of square
MCA	Multiple Classification Analysis
-O ₂	Sauerstoffarm (O ₂ -arm), 4,5 mgO ₂ /l
+O ₂	Sauerstoffreich (O ₂ -reich), Sättigung
-Temp.	10°C Wassertemperatur
+Temp.	20°C Wassertemperatur
-Ström.	keine Strömung
+Ström.	Strömung v=10cm/sec.
µg/l; µg/kg	1 ppb
µg/g	1 ppm
mg/l; mg/kg	1 ppm

I N H A L T

	Seite
1. Einleitung	1
1.1 Quecksilber	1
1.1.2 Schadwirkung des Quecksilbers auf den Menschen	3
1.1.3 Quecksilber im Wasser und Sediment	3
1.1.4 Quecksilber in verschiedenen Wirbellosen	6
1.1.5 Quecksilber im Fisch	7
1.2 Die Bedeutung der Wasserparameter bei der Hg-Akkumulation	10
1.2.1 Temperatur	10
1.2.2 Sauerstoff	11
1.2.3 Strömung	13
1.3 Ziel der Arbeit	14
1.3.1 Vorversuch	14
1.3.2 Hauptversuche	15
1.3.3 Bedeutung für den Umweltschutz	15 a
2.0 Material und Methodik	16
2.1 Versuchsanlagen	16
2.2 Versuchsfische	19
2.2.1 Vorbereitung der Fischproben zur weiteren Analyse	19
2.3 Wasserparameter	20
2.4 Quecksilberbestimmung im Wasser	22
2.5 Quecksilberbestimmung im Fischmaterial	23
2.6 Bestimmung weiterer Parameter	24
3.0 Versuche und Ergebnisse	25
3.1 Vorversuch	25
3.1.1 Durchführung	25
3.1.2 Ergebnisse	25
3.1.4 Statistische Auswertung der Ergebnisse der Vorversuche	28
Zusammenfassung der Ergebnisse des Vorversuchs	30

	Seite
3.2 Hauptversuche	33
3.2.1 Durchführung der einzelnen Versuche	33
3.2.2 Vergleich der Ergebnisse der Hauptversuche	59
3.2.2.1 Plateauwert	59
3.2.2.2 Rangordnung der Organe	59
3.2.2.3 Ausmaß der Hg-Kontamination in Abhängig- keit von den Wasserparametern	60
3.3 Vergleichende Analyse der Versuche	61
3.3.1 Qualitative Aussagen aufgrund der Mittelwerte	61
3.3.1.1 Kieme	61
3.3.1.2 Niere	63
3.3.1.3 Leber	63
3.3.1.4 Muskulatur	63
3.4 Varianzanalyse	66
3.4.1 Kieme	67
3.4.2 Niere	71
3.4.3 Leber	74
3.4.4 Muskulatur	76
3.4.5 Zusammenfassende Bemerkungen zu den quanti- tativen Aussagen	79
4.0 Diskussion	81
4.1 Kritische Stellungnahme zu den Versuchen	81
4.2 Interpretation der Versuchsergebnisse	83
4.3 Indikatorfunktion der Organe	99
4.4 Anwendungsrelevanz und Konsequenzen der Er- gebnisse	101
4.4.1 Für spätere Untersuchungen	101
4.4.1.1 Für gesetzliche Bestimmungen	102
4.4.2 Weitere Konsequenzen für die Umwelt	102
4.4.3 Anregungen für spätere Forschungsarbeiten	103
4.4.3.2 Ausprägungen der Wasserparameter im in- termediären Bereich	103
Zusammenfassung	104
Literaturverzeichnis	112



Digitized by the Internet Archive
in 2026

1. EINLEITUNG

In zahlreichen Untersuchungen wird gezeigt, daß Fische und andere Wasserorganismen als Indikator für Gewässerverunreinigung dienen können. Der Grad der Akkumulation, Verteilung und Elimination der kontaminierten Fische und andere Wasserorganismen wird nicht nur von der Schadstoffkonzentration des umgebenden Wassers und seiner Sedimente, sondern auch von einer Reihe anderer Faktoren beeinflusst. Dazu gehört neben der biologischen Besiedlung (Flora und Fauna) die physikalische und chemische Beschaffenheit des Wassers, wobei vor allem die Temperatur, der pH-Wert, der Salz- und Sauerstoffgehalt, die Strömung, der Schwebstoffgehalt und die Zeit, in der sich die Lebewesen im kontaminierten Wasser befinden von Bedeutung sind.

Es bestehen ganze Reihen von Untersuchungen über die Wirkung der o.g. Wasserparameter bei einem Akkumulationsgeschehen der Schadstoffe bei Fischen nicht jedoch über den synergistischen Einfluß dieser Faktoren.

Die vorliegende Arbeit liefert Daten über die synergistische Wirkung der miteinander kombinierten Wasserparameter, Temperatur, Sauerstoffgehalt und Strömung auf das Akkumulationsverhalten des Schwermetalls Quecksilber in verschiedenen Karpfenorganen (Kieme, Niere, Leber und Muskulatur).

1.1 Quecksilber

Mit der Nutzbarmachung des mineralischen Quecksilbers hat die Gesamtbelastung der lebenden Natur durch industrielle quecksilberhaltige Abfälle rapide zugenommen.

Als natürliches Mineral ist das Sulfid als Zinnober (HgS) das wichtigste. Andere Quecksilberminerale haben keine technische Bedeutung. Quecksilber kommt in Lösung in Form von ein- oder zweiwertigen Ionen vor; die meisten Hg(I) -Verbindungen sind schwer löslich, ein großer

Teil der Hg-(II)-Salze dagegen gut löslich. Quecksilber bildet außerdem recht stabile organische Verbindungen mit Alkylgruppen wie z.B. CH_3Hg^+ und CH_3HgCH_3 (Monomethyl- und Dimethylquecksilber) (WHO, 1976). Die Tatsache, daß bestimmte Mikroorganismen die Fähigkeit haben, anorganisches und organisches Quecksilber in die hoch toxische Form des Methylquecksilbers umzuwandeln, macht jede Form des Quecksilbers zu einem unter Umständen stark gesundheitsgefährdenden Umweltschadstoff.

Die wichtigsten industriellen Verwendungsgebiete des Quecksilbers liegen in der Chlor-Alkali-Elektrolyse, der Herstellung von Batterien, Katalysatoren, Schutzanstrichen (Pigmente), Schädlingsbekämpfungsmitteln (Fungizide) und von Dentalquecksilber für Amalgamfüllungen (Nriagu, J.O. 1979).

Die durch die Zunahme der industriellen Hg-Produktion erzeugte anthropogene Belastung der Umwelt ist besorgniserregend. Gemäß einer EG-Richtlinie sind deswegen Quecksilber und seine Verbindungen in die sogenannte Liste I aufgenommen worden. Hierin sind Stoffe aufgeführt, die von den Kriterien Toxizität, Persistenz und Bioakkumulation mindestens zwei erfüllen und deswegen im Umweltschutz prioritär zu behandeln sind.

Das Abwasserabgabengesetz der BRD schreibt vor, daß Quecksilber zur Bestimmung der Schädlichkeit eines Abwassers gemessen werden muß (Bundesgesetzblatt Nr. 118 Z 1997A) und wird damit der Gefährlichkeit dieses Metalls gerecht.

Nach den Richtlinien des EG vom 15.7.1980 darf der Hg-Gehalt im Wasser, das für den menschlichen Gebrauch bestimmt ist, die höchstzulässige Konzentration von 0.001 mgHg/l ($=1,0 \text{ µgHg/l}$) nicht überschreiten (MAC=Maximum Admissible Concentration) (80/77, EEC).

1.1.2 Schadwirkung des Quecksilbers auf den Menschen

Die Belastung des Menschen durch Quecksilber tritt in verschiedenen Lebensbereichen auf. Die Aufnahme von Quecksilber erfolgt in erster Linie über Trinkwasser, Nahrung, Pharmaka und Kosmetika.

Nach einer oralen Aufnahme über längere Zeit bleibt nach Hapke (1973) bis 0,2 mg/Tag für den Menschen ohne sichtbare Wirkung. Die Grenzdosis beträgt nach ihm 0,3 mg/Tag. Wirkungen und Vergiftungen können ab 0,5 mg/Tag auftreten und ab 1,0 mg/Tag sind Todesfälle möglich.

Die Bevölkerung im Bereich der Minamata-Bucht in Japan verzehrten Fische, die zum Teil bis 20 mgHg/kg NG enthielten. In den Jahren 1950 bis 1960 starben dort über 50 Personen und einige Hundert erkrankten schwer. Die größte Schädigung war im zentralen und peripheren Nervensystem festzustellen. Weiter wurden Niere und intermediärer Stoffwechsel geschädigt. Methylquecksilber, andere kurzkettige Alkylquecksilberverbindungen und inhalierter Quecksilberdampf können die Bluthirnschranke und die Plazenta passieren. Nach Aufnahme organischer Quecksilbersalze oder nach Inhalation elementarer Hg-Dämpfe findet man 50% bis 90% des Quecksilbers in der Niere wieder (Harada, Y. 1966, Igata et al. 1975, WHO 1976, Clarkson, T.W. 1983).

Die tatsächliche Belastung des Menschen unter normaler Umweltbedingung und Ernährung im europäischen Raum beträgt zur Zeit 0,005 - 0,03 mgHg/Tag, liegt also 1-2 Zehnerpotenzen unter der gefährlichen Dosis.

1.1.3 Quecksilber im Wasser und Sediment

Die Quecksilber Belastung unserer Biosphäre wird besonders in den Gewässern deutlich. Unter Berücksichtigung der Wasserführung errechnet Winkler (1975) für die drei Flüsse der BRD, Rhein, Weser und

Donau eine jährliche Fracht von 25 Tonnen gelöstem Quecksilber. Nimmt man den an Schwebstoff gebundenen Anteil hinzu, verdoppelt sich in etwa die Gesamtfracht. Angesichts der Notwendigkeit, aus Oberflächenwasser immer mehr Trinkwasser gewinnen zu müssen, wird die Beurteilung und Bewertung der Hg-Konzentration der Binnengewässer unumgänglich.

Obwohl die höchstzulässige Hg-Konzentration (MAC) von 0,001 mgHg/l generell noch um das 20-100 fache über den entsprechenden Mittelwerte des Quecksilbers in Fluß- und Binnenseewässern der BRD liegt, wird diese Grenze an manchen Flußabschnitten (Großindustrie) nahezu erreicht.

Ein Vergleich der durchschnittlichen Hg-Konzentrationen (Medianwerte) der Oberflächengewässer im Untersuchungszeitraum von 1971 - 1978 (DFG-Bericht 1982) weist den Rhein (vorallem Niederrhein) als am stärksten belastete (Hg-Konzentrationen zwischen Köln und Bimmen : $\bar{m} = 0,13-0,31 \mu\text{gHg/l}$) Gewässerstrecke aus. Die Konzentration der Metalle/Metalloide in der gelösten Phase nimmt auf der Rheinfließstrecke von Bodensee bis zur niederländischen Grenze fast kontinuierlich zu. Dieser im Rhein festgestellte Trend, daß mittlere Hg-Konzentration nur mäßig, aber ständig zunimmt, weist eindeutig auf anthropogene Einflüsse hin. Der Quecksilbereintrag muß auf nur wenige größere Emittenten zurückzuführen sein (Dfg-Bericht 1982). Weiter wurde eine mehr als 5% ige Überschreitungshäufigkeit des Quecksilberwertes für den Main (bei Kostheim) und die Weser (bei Bremen) nachgewiesen.

Dall'Aglio (1968) gibt Werte von 0,01 bis 0,05 $\mu\text{gHg/l}$ ($=0,00005 \text{ mg/l}$) für Grundwasser in der Toscana (Italien) an. Nach Klein (1972) betrug der durchschnittliche Quecksilbergehalt in 67 unbelasteten Flüssen und Seen der USA 0,06 $\mu\text{gHg/l}$.

Verschiedene Länder, die WHO und die EG haben inzwischen Grenzwerte (G) bzw. Zielwerte (Z) für Quecksilber im Wasser aufgestellt. So empfehlen z.B. WHO 5,0 $\mu\text{gHg/l}$ für Rohwasser, 1,0 $\mu\text{gHg/l}$ für Trinkwasser; UdSSR 5,0 $\mu\text{gHg/l}$ für Rohwasser und BRD 0,5-1,0 $\mu\text{gHg/l}$ für

Rohwasser. Die EG-Richtlinien schreiben vor für Rohwasser : $Z=0,5$ $\mu\text{gHg}/\text{l}$, $G=1,0$ $\mu\text{gHg}/\text{l}$ ($=0,001$ mgHg/l = 1 ppm).

Es ist jedoch nicht nur der Quecksilbergehalt des Wassers von Bedeutung, sondern auch die in den feinkörnigen Gewässersedimenten anzu-treffenden Hg-Konzentrationen, die den Quecksilbergehalt des Wassers um einige Zehnerpotenzen übertreffen können.

Der natürliche Quecksilbergehalt in den Sedimenten liegt in der Regel auch höher als im Wasser. Turekian und Wedepohl (1961) analysierten in verschiedenen Tonsedimenten durchschnittlich 0,4 mgHg/kg TS (Trockensubstanz). (Proben stammten aus der Erdkruste mehrerer Gegenden).

Moore und Sutherland (1980) geben aus zwei Seen (Nord-Kanada), die noch keine anthropogene Belastung zeigen, Sedimentwerte zw. 0,0028 und 0,0035 mgHg/kg NG (Naßgewicht!) für Quecksilber an. Nach Offhaus und Mitarbeiter (1972-1975) enthielten Sedimente unbelasteter baye-rische Gewässer bis zu 0,2 mgHg/kg TS. In sandigen Ablagerungen der 27 untersuchten Flüssen Wisconsin's (USA) fand Konrad (1972) Queck-silberkonzentrationen zwischen 0,01 - 0,05 mgHg/kg TS, in schlammigen Sedimenten zwischen 0,05 - 0,1 mgHg/kg TS.

Das Ausmaß der anthropogenen Verschmutzung wird aus den folgenden Durchschnittswerten für Quecksilber deutlich. Gering belastet sind die Weser- und Neckar- Sedimente mit Hg-Gehalten unter 2 mgHg/kg NG; die Ablagerungen im Oberrhein enthalten durchschnittlich 3 mgHg/kg NG. Extreme Anteile treten mit 38-850 mgHg/kg NG in den Sedimenten des Unterlaufs der Wupper auf. Stark kontaminiert sind auch die Ablagerungen der Ober-Elbe (15-20 mgHg/kg NG), des Rhein-Main-Gebietes (15-20 mgHg/kg NG) und des Mittelrheins (15-25 mgHg/kg NG) (Förstner und Müller 1974).

Ein Vergleich mit diesen früheren Stichproben (Untersuchungszeit : 1970-1972) und mit den Daten der Jahre 1975-1977 (DFG-Bericht 1982) ergibt, daß die in den Jahren 1970 bis 1972 gewonnene Daten eine ähnliche Entwicklungstendenz innerhalb der einzelnen Fluß gebiete auf-weisen wie die Werte der Jahre 1975-1977.



Moore und Sutherland (1980) fanden in den Sedimenten zweier von Ihnen untersuchten mit Quecksilber kontaminierten Seen (Nord-Kanada) Hg-Konzentrationen zwischen 0,5-5 mgHg/kg NG. Obwohl die Belastungsquellen beider Seen (stillgelegte Goldminen) seit Jahrzehnten nicht mehr existierten, waren die Sedimentproben immer noch stark belastet. Denn, die im Sediment deponierten Metallmengen können infolge eines sich verschlechternden biologisch-chemischen Gewässerzustandes remobilisiert werden. Die Remobilisierung kann durch die Beteiligung von Redoxreaktionen oder durch mit Hilfe von Mikroorganismen (z.B. Methanbildende-Bakterien, Pilze) erfolgen (Hartung et al. 1972, Frimmel 1976, Andren und Nriagu 1979, Kodo et al. 1982). Die Vorgänge, die zur Remobilisierung führen sind bisher noch nicht vollständig bekannt (Akagi et al. 1979, Clarkson et al. 1984).

1.1.4 Quecksilber in verschiedenen Wirbellosen

Der Verschmutzungsgrad eines Gewässers kann sich unter anderem im Gehalt eines Schadstoffes in den Wasserorganismen widerspiegeln. Johnels et al. (1967) stellten durch Vergleichsmessungen in Schweden fest, daß der Quecksilbergehalt in Trichopteren von 0,052 mgHg/kg NG auf 17 mgHg/kg NG, in Plocepteren von 0,072 auf 24 mgHg/kg NG angestiegen war. Die Proben wurden jeweils ober- bzw. unterhalb einer Papierfabrik entnommen.

Wachs (1982) untersuchte in der Zeit von 1975 bis 1978 am Lechkanal (oberhalb Augsburg bis Rain, BRD) des Schwermetallakkumulationsgeschehen in fluviatilen Organismen. Er gibt als natürlichen Pegel der Flora Quecksilberkonzentrationen unter 0,5 mgHg/kg NG an. Der maximal gefundene Durchschnittsgehalt des fadenförmigen Abwasserbakteriums (*Sphaerilus natans*) lag bei 8 mgHg/kg NG, wobei das Wasser eine hohe Durchschnittskonzentration an Quecksilber aufwies, nämlich 0,6 µgHg/l (0,0006 mg/l). Die Probeentnahmestelle lag beim Werk Gerts-hofen der Hoechst AG.

In den Moosen fand Wachs bis zu 11 mgHg/kg NG, in Tubificiden, Aseln und Chronomidenlarven war ca. 1,0 mgHg/kg NG zu messen. In der gesamten Untersuchungsstrecke waren die Quecksilberwerte der Wasserproben je nach Standort unterschiedlich hoch und zwar von 0,1 bis 0,6 µgHg/l (0,0001-0,0006 mg/l).

1.1.5 Quecksilber im Fisch

Offhaus und Mitarbeiter (1972-1975) geben als Nullpegelwerte für Karpfen aus verschiedenen bayerischen Gewässern einen Medianwert (Für Gesamtfisch) von 0,06 mgHg/kg NG an. Krocza et al. (1973) fanden bei Regenbogenforellen aus Fließgewässer eine durchschnittliche Quecksilberkonzentration von 0,05 mgHg/kg NG (in Österreich).

Im Gegensatz hierzu wurden häufig bedenklich hohe Quecksilberrückstände aus Süß- und Meeresfischen gemeldet. Mit einem Quecksilbergehalt bis 0,5 mgHg/kg NG waren z.B. Fische aus der Donau aber auch aus anderen größeren Flüssen der BRD bereits belastet (Kreutzer&Wismath 1978). Mehr als 0,5 mgHg/kg NG wurde aus Staustufen der Amper (Bayern) von denselben Autoren gefunden. Sie meinen, daß die langsame Fließgeschwindigkeit der Gewässer die Schadstoffanreicherung besonders begünstigt.

Moore und Sutherland (1980, vgl. auch Abschn. 1.1.3) fanden eine durchschnittliche Hg-Konzentration von 4 mgHg/kg NG in der Forellensmuskulatur und 0,18 mgHg/kg in der Hechtmuskulatur. Die Fische stammten aus dem gleichen Standort des Giauque Sees (Nord-Kanada) wie die o.g. Sedimentproben. Obwohl der Quecksilbergehalt des Wassers im Nullpegelbereich lag (0,2 µgHg/l) war die Belastung dieser Fische ungewöhnlich hoch. Die Autoren geben die Hg-Kontamination des Sediments als Belastungsquelle an. Die Muskulatur der Kontrollfische aus unbelasteten Seen im gleichen Gebiet enthielten nämlich bei gleicher Wasserbelastung eine durchschnittliche Hg-Konzentration von 0,2mgHg/kg NG.

Die durchschnittliche Sedimentkonzentration der Kontrollseen betrug 3,1 mgHg/kg NG.

Quecksilber wird sowohl über die Nahrung als auch direkt über das Wasser (Kiemen und Haut) von den Fischen aufgenommen. Während die Aufnahme über das Wasser wesentlich schneller verläuft und bereits nach 3-4 Tagen der Exposition meßbar ist (Braun und Yediler 1980), ist die Aufnahme über die Nahrung ein Langzeitphänomen (Simpson et al. 1974, Cappon et al 1981). Gewöhnlich zeigen die Raubfische gegenüber den Omnivoren wesentlich höhere Quecksilberbelastung. So enthielten z.B. die von Fermeite et al. (1973) untersuchten Hechte bis zu 20 mgHg/kg NG.

Da die Fische einen erheblichen Anteil an der menschlichen Nahrung einnehmen können, haben viele Länder für den tolerierbaren Quecksilbergehalt im Fischfleisch Höchstmengenverordnungen herausgegeben. In der BRD darf die Hg-Konzentration in den Speisefischen 1,0 mgHg/kg NG (=1ppm) nicht überschreiten. Die neuen Richtlinien von 1979 des Bundesgesundheitsamtes empfehlen sogar 0,8 mgHg/kg NG (gültig für eßbaren Teil der Fische). Die USA und Kanada tolerieren Werte bis 0,5 mgHg/kg NG, in Italien sind 0,7 mgHg/kg NG der Fischmuskulatur erlaubt. Die skandinavischen Länder nehmen wie die BRD 1,0 mgHg/kg NG als obere Grenze.

Der Gehalt an Quecksilber in der überwiegenden Mehrheit der in der BRD angelandeten Fische liegt zwar unter den zulässigen Menge (so lagen die Quecksilberrückstände im eßbaren Anteil von Karpfen, die aus diversen Gewässern in Schwaben und Oberbayern stammten, zwischen 0,08-0,2 mgHg/kg NG, Bericht der Landesuntersuchungsamt-Südbayern, 1985), bei den übergroßen Exemplaren der Meeresfische oder bei Tiefseefischen wird aber häufig die zugelassene Höchstmenge überschritten.

Außer in der Lebensmittelhygiene spielt der Quecksilbergehalt der Fische bei der Gewässerüberwachung eine Rolle. Durch Fang von Fried- und Raubfische aus unterschiedlichen Standorten erhofft man sich

vielfältige Informationen über den Verschmutzungsgrad eines Gewässers. Aus den Untersuchungen zahlreiche Autoren, wie Johnels et al. (1967), Hannerz (1968), Rucker (1968), Jernelöv und Lann (1971), Cunningham und Tripp (1973), um einige zu nennen, folgt, daß der Verschmutzungsgrad der Umwelt mit Quecksilber sich im Gehalt dieses Elementes in den Fischen und anderen Wasserorganismen widerspiegelt.

Insbesondere in den 60'er und 70'er Jahren beschränkten sich die Untersuchungen aus ökonomischen Gründen meist auf die eßbaren Teile der Fische. Somit blieb bei Schwermetallanalysen die Indikatorfunktion meist nur auf die Muskulatur beschränkt.

Zur differenzierteren Beurteilung des Belastungsgrades eines Gewässers mit Umweltgiften werden immer häufiger außer Muskulatur Kieme, Niere, Milz und Leber herangezogen (Suzuki 1973, MvKim 1976, Radou und Mitarbeiter 1979, Braun und Yediler 1980). Diese Organe reagieren im Gegensatz zur Muskulatur bereits nach wenigen Tagen auf den Schadstoff in ihrer Umgebung, wie auch diverse Laborversuche beweisen, und liefern damit über die Kinetik einer Quecksilberanreicherung schnellere und verlässlichere Informationen (Hannerz 1968, Olsen 1973, Boudou 1979, Sastry 1979, Radou 1979). Zudem scheinen diese Organe sehr zuverlässige Indikatoren für den Einfluß der Umgebungsparameter wie Sauerstoff, Temperatur, pH-Gehalt und Härte zu sein (McLeod und Pessah 1973, Olson et al. 1973a,b,c, Rodgers und Beamish 1981, Miller und Akagi 1979).

In der vorliegenden Arbeit wurden die bereits erwähnten Organe, Kieme, Niere, Leber aufgrund ihrer zuverlässigen Indikatorfunktion (vorallem bei kurzzeitiger Belastung) zusätzlich zur Muskulatur der Karpfen untersucht.

1.2 Die Bedeutung der Wasserparameter bei der Hg-Akkumulation

Ohne den potentiellen synergistischen Einfluß der verschiedenen Umweltparameter bei einer Schadstoffbelastung zu untersuchen kann keine allgemeingültige Aussage gemacht werden.

Im folgenden wird auf einige Arbeiten näher eingegangen, die die Wirkung, insbesondere des Quecksilbers aber auch anderer Schadstoffe unter Berücksichtigung der in dieser Arbeit untersuchten Wasserparameter, Sauerstoff, Temperatur, Strömung, auf Fische erforschen.

1.2.1 Temperatur

McLeod und Pessah (1973) untersuchten die Zusammenhänge zwischen Temperatur, Quecksilbertoxizität und Stoffwechselrate bei Regenbogenforellen. Die Versuche fanden bei Temperaturen von 5°C, 10°C und 20°C ($Q_{10}=1,7$). Als Testsubstanz dienten $HgCl_2$ und Phenylquecksilberacetat. Die Versuchszeit erstreckte sich jeweils über 96 Stunden. Hierbei war die maximale Quecksilberakkumulation bei der höchsten Versuchstemperatur erreicht. Die von den Autoren gefundenen Q_{10} -Werte (Van't Hoff. Temperaturkoeffizient) lagen bei Temperaturen zwischen 5°C und 10°C mit $Q_{10}=3,2$ höher als bei 15°C und 20°C.

Weiterhin stellten McLeod und Pessah fest, daß eine Schadstoffbelastung von 0,1 mgHg/l (Hg aus $HgCl_2$) bei 20°C Wassertemperatur den Sauerstoffverbrauch von 730 auf 658 mgO₂/kg.h reduzierte, also um 10% ; dagegen betrug die Abnahme bei 10°C nur 5%. Je höher die Temperatur, desto geringer wurde die Quecksilbertoleranz. Die aktive Stoffwechselrate stand in direkter Relation zur Temperatur, aber in umgekehrter zur Hg-Konzentration im Wasser. Die Autoren folgern daraus, daß Quecksilber (aus $HgCl_2$) bei höherer Temperatur auf das Stoffwechselgeschehen stärker hemmend wirkt als bei niederen Temperaturen. Dementsprechend war die Mortalitätsrate im 20°C-Versuch wesentlich höher als bei Kaltwasserversuchen.

Auch die Elimination des Quecksilbers aus dem Fischfleisch erwies sich temperaturabhängig. Während bei Temperaturen von 5 °C und 10 °C die Abnahme des Quecksilbers erst nach 40 Tagen bemerkbar wurde, zeigte sich bei 20 °C bereits nach 10 Tagen eine deutliche Elimination des Quecksilbers aus dem Muskelfleisch.

Die Untersuchungsergebnisse von Reinert et al. (1974) konnten die Aussagen von McLeod und Pessah bestätigen. Die Regenbogenforellen, die 12 wochenlang bei unterschiedlichen Wassertemperaturen und einer konstanten Quecksilberkonzentration von 0,3 µgHg/l ausgesetzt waren, akkumulierten entsprechend dem Temperaturanstieg mehr Quecksilber. Mit einem anderem Giftstoff, p,p'DDT, kamen dieselben Autoren zu denselben Ergebnissen.

Murphy und Murphy (1971) berichten über 36-Stunden-Versuche mit der Testsubstanz p,p'DDT bei 5 °C und 20 °C. Bei den eingesetzten Moskitofischen (*Gambusia affinis*) zeigte sich eine Proportionalität zwischen Akkumulationsrate und Temperatur.

Lloyd und Skidmore (1975) fanden, daß die Toleranzkonzentration von Zink bei niedrigeren Wassertemperaturen für Regenbogenforellen höher lag.

Hudson und Sprague (1975) weisen auf den Einfluß der Wassertemperatur mit dem experimentellem Befund hin, daß für die Fische im Miramichiriver (New Brunswick) bei Anwesenheit hoher Zinkkonzentrationen in den Wintermonaten die Mortalitätsrate niedriger lag. Die Arbeiten von Cairns et al. (1957) und Burton et al. (1972) bestätigen die Ergebnisse der oben genannten Autoren.

1.2.2 Sauerstoff

Der Zusammenhang zwischen Sauerstoffgehalt im Wasser und Schadstoffwirkung auf Fische wurde bereits von anderen Autoren experimentell untersucht. Im Folgenden werden repräsentative Versuchsergebnisse

verschiedener Experimentatoren aufgeführt. Lloyd (1961) fand einen Anstieg der Zinktoxizität bei Regenbogenforellen bei Abnahme des Sauerstoffgehaltes. Er führt dies auf den gleichzeitigen Anstieg des Atemvolumens bzw. der Atmungsfrequenz zurück.

Die LD_{50} -Versuche mit Quecksilberacetat und Quecksilberthiocyanat bei unterschiedlichen Sauerstoffkonzentrationen (2,1 bis 7,1 mgO₂/l) der Autoren Curtis, Copeland und Ward (1979) zeigen deutlich, wie eine Abnahme der Sauerstoffkonzentration die toxische Wirkung dieser Stoffe erhöht. Die Mortalitätsrate war bei der geringsten Sauerstoffkonzentration am höchsten.

Auch Amend berichtet (1969) über die Zunahme der Mortalität bei Regenbogenforellen unter Äthylquecksilberexposition bei Abnahme des Sauerstoffgehaltes im Atemwasser. Eine durch diese O₂-Mangelsituation einsetzende Hyperventilation und dadurch hervorgerufenen verstärkten Kontakt mit dem Gift soll zu irreversiblen Rissen in den Kiemenepithelien führen und somit die Mortalität erhöhen.

Brafield und Matthiesen (1976) untersuchten die Sauerstoffverbrauchsrate, der in hohen Zinkkonzentrationen exponierten Stichlinge. Sie stellten bei einer Zinkmenge von 1 mgZn/l im kalziumfreien Versuchswasser zuerst eine Tendenz zur Erhöhung des Sauerstoffverbrauchs fest, die aber im Verlauf des Versuchs (Versuchsdauer 40 Stunden) sehr schwankte und kurz vor dem Eintritt des Todes sogar stark reduziert war. Die Autoren beobachteten zusätzliche Symptome wie: Gleichgewichtsstörungen, langanhaltende Inaktivität und ruckartiges Schwimmen. Wie Lloyd (1961) sind sie der Meinung, daß der zinkbedingte Permeabilitätsverlust der Kiemen die Sauerstoffaufnahme und die Versorgung der Organe sowie der Muskulatur reduziert. Sie folgern, daß eine langzeitige, subletale Zinkbelastung der Gewässer die Überlebensfähigkeit und Vitalität der Fische gefährden kann, da der Sauerstoffverbrauch bzw. die Sauerstoffaufnahme und Sauerstoffverwertung gestört sind.

McKim (1981) dagegen führt den vermehrten Sauerstoffverbrauch bei einer Zinkexposition auf die erhöhte Motilität der Fische zurück.

1.2.3 Strömung

Arbeiten, die den Einfluß der Wasserströmung auf die Quecksilberakkumulation in Fischen zu klären versuchen, sind mir nicht bekannt. Da der Faktor Strömung den Stoffwechsel der Fische beeinflusst (Brett 1964, 1965a, Dahlberg et al. 1968, Rulifson 1977) nimmt er wahrscheinlich auch Einfluß auf die Schadstoffanreicherung. Außerdem ist die Strömung einer der prägenden Parameter für den Typus eines Fließgewässers, deshalb soll sie in die eigene Untersuchungen einbezogen werden.

1.3 ZIEL DER ARBEIT

Arbeiten, die den synergistischen Effekt (insbesondere 3-fach-Wechselwirkungen) der bereits erwähnten Wasserparameter auf die Schwermetallaufnahme- und akkumulation bei Fischen untersuchen, sind mir nicht bekannt. Deswegen sollen die drei Wasserparameter Temperatur, Sauerstoff, Strömung bzw. ihre je zwei Ausprägungen miteinander kombiniert und der synergistische Einfluß dieser Wechselwirkungen auf das Anreicherungsverhalten von Quecksilber (aus HgCl_2) in verschiedenen Organen - Kieme, Niere, Leber und Muskulatur - des Karpfens (*Cyprinus carpio* L.) in dieser Arbeit aufgezeigt werden.

Diese Parameterkombinationen wie z.B. 10°C , O_2 -arm, Strömung, die ich in meinen Experimenten untersuche, sind zum Teil als Folge der Gewässerverschmutzung durch Industrie und Landwirtschaft in der Natur heute durchaus anzutreffen.

1.3.1 Vorversuch

Um die Hauptversuche für die oben erwähnten Fragestellungen zu optimieren, sollten, unter Zuhilfenahme bisheriger Erfahrungen aus früheren Arbeiten (Braun und Yediler 1980) anhand von Voruntersuchungen die bestmögliche Bedingungen für die Durchführung der Hauptversuche ermittelt werden.

1. Es sollte geprüft werden, welche anorganische Quecksilberverbindung (Hg-Chlorid oder Hg-Nitrat) schneller von den Fischen akkumuliert wird. Es zeigte sich in früheren Versuchen mit Tubificiden und Karpfen (Yediler und Braun), daß sich in Abhängigkeit von der eingesetzten anorganischen Quecksilberverbindung Unterschiede im Akkumulationsgeschehen einstellten. Aus Zeitgründen konnte die Kausalität dieses Phänomens nicht exakt aufgeklärt werden. Sollte

die Quecksilberanreicherung durch eine der beiden Substanzen schneller verlaufen, so würde dies die Versuchsdauer verkürzen und damit die Durchführung mehrerer Versuche im vertretbaren Zeitraum ermöglichen.

2. Es sollte überprüft werden, welche Zeitdauer für die Durchführung eines Hauptversuches anzusetzen ist.

3. Es sollte untersucht werden, ob ein Zusammenhang im Quecksilberanreicherungsverhalten zwischen den Organen Kieme, Niere, Leber und Muskulatur besteht und ob daraus eine Indikatorfunktion eines Organes abzuleiten sein würde.

1.3.2 Hauptversuche

Folgende Fragen sollen bei den Hauptversuchen beantwortet werden:

1. Wie schnell macht sich eine subtoxische Quecksilberbelastung unter verschiedenen Umweltbedingungen im Fisch bemerkbar, d.h. ab welchem Zeitpunkt kann man die Schadstoffbelastung analytisch erfassen?

2. Wie wirken sich die genannten Parameter und vorallem deren Kombinationen auf die Anreicherungs geschwindigkeit und auf die Akkumulation des Quecksilbers aus?

3. Gibt es bei gleichbleibender Hg-Exposition eine Abstufung der Hg-Konzentrationen in verschiedenen Karpfenorganen, und bleibt eine Reihenfolge in der Höhe der Quecksilberrückstände in den Organen bei wechselnden Umweltbedingungen erhalten? Gibt es ein sogenanntes "Indikatororgan" ?

4. Verhält sich ein Umweltparameter dominant? Darf man eine eventuelle Quecksilberanreicherung überhaupt auf einen einzigen Parameter zurückführen d.h. gibt es sogenannte Monokausalität oder wirken die Faktoren Temperatur, Sauerstoff und Strömung interaktiv, z.B. verstärkend oder abschwächend?

1.3.3 Bedeutung für den Umweltschutz

Neben der grundsätzlichen Bedeutung haben die Ergebnisse dieser Arbeit eine auf den Umweltschutz gerichtete Komponente. Wie in der Einleitung dargelegt, zählt Quecksilber zu den gefährlichsten Schadstoffen. Akkumulationsfördernde Faktoren müssen also beim Umweltschutz unbedingt berücksichtigt werden. Wie dargelegt, haben Wassertemperatur, Sauerstoffgehalt und Strömung der Gewässer vermutlich eine besonders zu beachtende Funktion. Alle drei Komponenten kommen in unterschiedlichsten Kombinationen vor und sind bereits durch menschliche Eingriffe verändert worden.

Aus Wärmekraftwerken wird erwärmtes Kühlwasser in die Flüsse geleitet. Wenn die Präferenztemperatur für bestimmte Fischarten dadurch erreicht wird, verdichtet sich in der Abwärmefahne der Fischbestand. Die Fische reichern die wenigen Schadstoffe verstärkt an, deren Anreicherungsquote durch Wärme gefördert wird.

Die Belastung der Gewässer mit sauerstoffzehrendem Abwasser ist eines der gravierenden Probleme des Umweltschutzes. Neben der direkten Schädigung auf sauerstoffatmende Organismen muß auch das öko-chemische Verhalten von Schadstoffen in Abhängigkeit von der Sauerstoffsituation berücksichtigt werden.

Der dritte in der Arbeit berücksichtigte Faktor, Strömung, ist in fast allen Flüssen durch menschlichen Eingriff beeinflusst worden. Begradigte und befestigte Flüsse fließen schneller. Wird der Fluß zur Stromerzeugung genutzt, staut sich das zunächst fließende Wasser vor dem Kraftwerk: Der Fluß nimmt Seencharakter an, mitgeführte Schadstoffe sedimentieren. Werden die Fische im fließenden oder im stehenden Wasser höhere Schadstoffrückstände aufweisen? Wenn es sich zeigt, daß die Faktoren Wassertemperatur, Sauerstoffgehalt und Strömung modifizierend auf Schwermetallaufnahme wirken müssen sie gerade auch unter dem Aspekt der Schadstoffaufnahme durch Fische mehr als bisher bei der Gewässergütebeurteilung berücksichtigt werden.

2.0 Material und Methodik

2.1 Versuchsanlagen

Die Vorversuche wurden in sogenannten "Arenabecken" durchgeführt. Ursprünglich waren sie von der Firma MBB¹ entwickelt, für unsere Versuchszwecke aber von uns modifiziert worden. Bei diesen Becken handelt es sich um drei PVC-Becken mit einem Wasserfassungsvermögen von jeweils 200 Litern (Abb. 1).

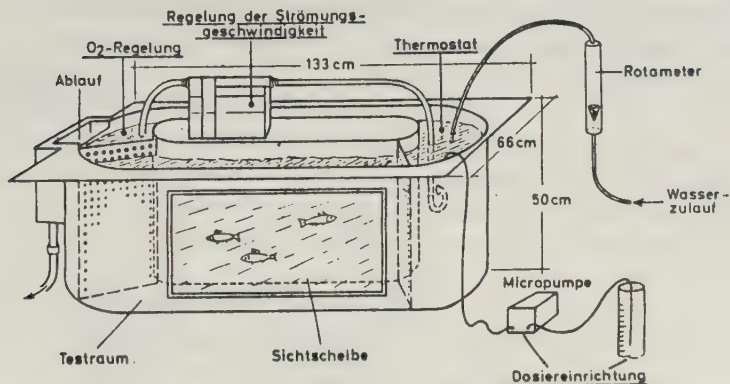


Abb. 1 "Arenabecken" für Vorversuche

Wie aus der Abbildung ersichtlich, erlaubte die Versuchsanordnung die Messung und die Dosierung des Sauerstoffs im Wasser. Mittels eines Thermostaten konnte die Regelung der Temperatur vorgenommen werden.

1) MBB = Messer-Schmitt-Bölkow-Blohm

Diese Becken erwiesen sich aber für die Erzeugung möglichst gleichmäßiger Wasserströmungen, die ja für die folgenden Versuche notwendig waren, als ungeeignet. Die Strömung wurde im "Arenabecken" durch Umpumpen des Wassers hergestellt. Auch bei Verwendung mehrerer Düsen und einer Abgrenzung des Aufenthaltsbereiches der Fische traten sehr inhomogene Strömungsverhältnisse auf. Beobachtungen ergaben, daß sich die Karpfen bevorzugt in den Ruhezeiten aufhielten. Bei diesem Verhalten der Fische ist nicht gesichert, daß die Wasserströmung eine Veränderung der Schwimmaktivität hervorruft.

Es mußte deshalb eine neue Versuchsanlage entwickelt werden. Die besten Ergebnisse zur Herstellung möglichst gleichmäßiger Wasserströmung erzielte ich in Vorversuchen mit einem zylinderförmigen Rundbecken (Abb. 2)

Hierbei wurde als Material transparentes PVC für die Außenwand und graues PVC für die Innenwand verwendet. Das Schaufelrad (Abb. 2) zur Erzeugung möglichst gleichmäßiger Strömungen ($v=10$ cm/s) wurde durch einen Gummiriemen über einen regelbaren Elektromotor angetrieben.

Der Bereich etwaiger Turbulenzen in unmittelbarer Schaufelradnähe wurde den Fischen durch das Einsetzen grobmaschiger Netze versperrt, auch um zu verhindern, daß die Fische mit dem Schaufelrad in Berührung kommen konnten (Abb. 2).

Der Schwimmbereich der Fische machte etwa $2/3$ des Beckens aus. Das Gesamtvolumen des Beckens betrug 75 Liter bei einer Füllhöhe von 20 cm.

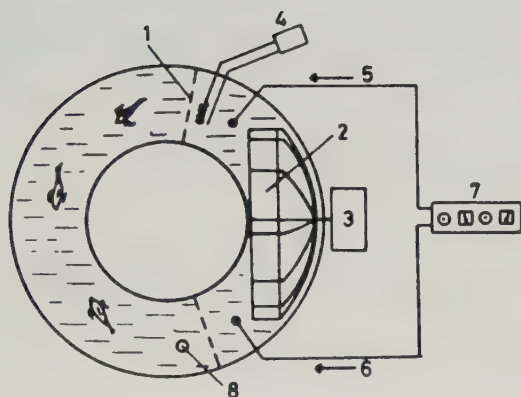


Abb. 2 Rundbecken Aufsicht

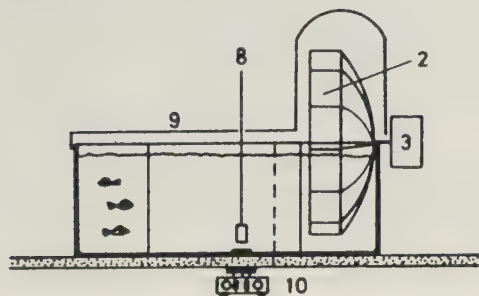


Abb. 2.1 Rundbecken Seitenansicht

- | | |
|----------------------------|----------------------|
| 1. Trennwand aus Fischnetz | 6. N_2 -Zufuhr |
| 2. Schaufelrad | 7. O_2/N_2 -Regler |
| 3. Elektromotor | 8. O_2 -Elektrode |
| 4. Thermostat | 9. Abdeckung |
| 5. O_2 -Zufuhr | 10. Magnetrührer |

2.2 Versuchsfische

Als Versuchsfische wurden einsömmerige (= K1) Karpfen (*Cyprinus carpio* L.) verwendet.

Der Karpfen ist in der Regel leicht und problemlos im Labor zu halten. Als Fisch, der unter natürlichen Bedingungen sowohl im Unterlauf der Flüsse als auch im stehenden Gewässer vorkommt und relativ große Temperatur- und Sauerstoffschwankungen toleriert (Schäperclaus 1979), schien er für die geplanten Versuche geeignet.

Die Versuchstiere stammten von der Institutsaußenstelle Wielenbach der Bayerischen Landesanstalt für Wasserforschung und wurden bis zum Versuchsbeginn in fließendem Leitungswasser (ca. 13°C) bei Fütterung mit Forellentrockenfutter gehältert. Zeitweilig auftretender Parasitenbefall (*Dactylogyrus vastator*, *Chilodonella cyprini*, *Costia necatrix*) wurde mit einem NaCl-Bad nur teilweise erfolgreich bekämpft. Prinzipiell wurden die Fische nach der Einlieferung prophylaktisch mit NaCl (1.5 %) behandelt und auch später regelmäßigen Kontrollen unterworfen.

Sämtliche Versuche wurden nur mit nicht erkennbar kranken Fischen (25/Versuch) durchgeführt. Da Fische der erforderlichen Qualität und Größe nicht ständig verfügbar waren, mußte der Zeitplan gelegentlich verschoben werden.

2.2.1 Vorbereitung der Fischproben zur weiteren Analyse

An bereits vorher bestimmten Tagen (s.S. 33) wurden 6 mal jeweils 2 Fische am Versuchsende die restlichen 13 Fische entnommen und die zu untersuchenden Organe herauspräpariert. Dabei wurde von der Körpermuskulatur der dorsale und ventrale Abschnitt unterhalb der Rückenflossen beider Körperseiten ohne Gräten verwendet. Die Haut wurde

entfernt, um sicherzustellen, daß nur die Hg-Konzentration der Muskulatur in die Messung eingeht. Das Fischfleisch wurde aufschlußgerecht zerkleinert und gut vermischt. Von den Kiemen wurden die Kiemenbögen abgetrennt und nur die Kiemenblättchen zur Analyse verwendet. Die Gallenblase und die Milz wurden entfernt. Danach wurden Leber und Niere herauspräpariert und bis zur Hg-Bestimmung bei -20°C tiefgefroren aufbewahrt.

Das Organische Material (200 bis 300 mg) einer Probe wurde im Druckautoklaven der Firma Tölg mit 4 ml Säuregemisch (3 Volumenteile HNO_3 65% : 1 Volumenteil H_2SO_4 98%) bei 130°C circa 4 Stunden aufgeschlossen, danach mit Leitungswasser auf 110 ml aufgefüllt.

2.3 Wasserparameter

Der Leitungswasserdurchfluß gemessen über ein Rotameter, wurde so eingestellt, daß ein theoretischer Wasserwechsel in 4 Stunden pro Becken erreicht war (1,5 l/min).

Sauerstoff

Um einen Gasaustausch mit der Luft zu verhindern, waren die Becken mit einem Deckel aus PVC abgedichtet.

Die Einstellung eines bestimmten Sauerstoffgehaltes im Wasser erfolgte über Glaspapillen, durch die je nach Versuchsbedingung Preßluft oder Stickstoff ins Wasser geleitet wurde. Die Preßluft wurde der Hausleitung entnommen der technisch gereinigte Stickstoff stammte aus Gasflaschen der Firma Linde.

Zur Regelung der Stickstoffzufuhr, der zur Konstanthaltung des Sau-

erstoffgehaltes in Höhe von 4,5 mg/l notwendig war, stellte mir Herr Chem. Ing. Hartmann (im Haus tätig) freundlicherweise ein von ihm entwickeltes Gerät zur Verfügung.

Die Messung des Sauerstoffgehaltes erfolgte nach der Winkler-Methode und mit Sauerstoffsonden der Firma WTW - Weilheim (Sondentyp EO 166, Meßgerät OXI 42). Ein Magnetrührer sorgte für die nötige Anströmgeschwindigkeit zur Sonde. Um eine Verschmutzung der Elektromembranen zu verhindern, wurden diese täglich mehrmals gespült und die Becken jeden Tag von Futterresten und Fischabfallprodukten befreit.

Die Vorversuche wurden bei einem normalem Sauerstoffgehalt von $8,3 \pm 0,4$ mg O_2 /l durchgeführt (Sättigung). Bei den Hauptversuchen wurde bei zwei verschiedenen Sauerstoffkonzentrationen gearbeitet:

Unter sauerstoffreichen Bedingungen wurden die Becken durch Preßluft über Glaspapillen belüftet. Der Sauerstoffgehalt schwankte je nach Luftdruck und Sättigungsverhältnissen zwischen 7,7 und 8,6 mg O_2 /l bei 20°C Wassertemperatur. Unter sauerstoffarmen Bedingungen wurde der Sauerstoffgehalt auf einem Wert von $4,5 \pm 0,2$ (s) mg O_2 /l konstant gehalten. Dieser Sauerstoffgehalt entspricht einer 44%-igen Sättigung bei 10°C und einer 54%-igen Sättigung bei 20°C Wassertemperatur.

Temperatur

Die Wassertemperatur wurde bei Bedarf mit Heizspiralen eingestellt. Die Überwachung der Temperatur geschah über zwei Thermostaten. Diese waren in Reihe geschaltet um die Wahrscheinlichkeit eines zu starken Überhitzens des Wassers bei einem Defekt eines der Thermostaten zu verringern. Es ergab sich eine Schaltgenauigkeit von $\pm 0,1^\circ C$.

Die Vorversuche hatten eine Wassertemperatur in Höhe von $20^{\circ}\text{C} \pm 0,1^{\circ}\text{C}$ (s).

Die Hauptversuche erfolgten bei zwei verschiedenen Temperaturen, 10°C und 20°C . Die Zehngradversuche wurden während der Wintermonate durchgeführt, in denen die Leitungswassertemperatur zwischen 9°C und 11°C schwankte. Auf eine weitere Regulierung konnte somit verzichtet werden.

Bei 20°C -Versuchen wurde das Wasser wie vorhin erwähnt auf die gewünschte Temperatur geheizt, die mittlere Wassertemperatur war $19,8^{\circ}\text{C} \pm 0,5^{\circ}\text{C}$ (s).

Strömung

Die Versuche wurden ohne Strömung ($v=0$ cm/sec) sowie bei einer Strömung von 10 cm/sec durchgeführt. Die Strömungsgeschwindigkeit wurde mit einem Ott-Flügel ($d=7$ cm) und zur Absicherung mit einem "Current Flow Meter" gemessen.

Die angegebene Strömungsgeschwindigkeit ist Mittelwert mit einer maximalen Abweichung von $\pm 1,5$ cm/sec. Die Erzeugung der gewünschten Strömung wurde bereits vorher beschrieben (Kap. 2.1).

2.4 Quecksilberbestimmung im Wasser

Der Quecksilbergehalt des Versuchswassers betrug $0,5 \pm 0,08$ (s) $\mu\text{g/l}$. Diese Konzentration wurde bei Versuchsbeginn durch Zugabe einer QuecksilberstammLösung ($1\text{g Hg}^{++}/1$) der Firma Merck eingestellt. Zur Konstanthaltung der Quecksilberkonzentration wurde dem Versuchswasser über eine Schlauchpumpe Quecksilber-II-Chlorid-Lösung in entsprechender Menge zugesetzt. Zur Überprüfung des Schadstoffge-

haltes wurde täglich aus jedem Becken eine Wasserprobe entnommen, um die Dosierpumpe gegebenenfalls nachstellen zu können.

2.5 Quecksilberbestimmung im Fischmaterial

Die Fischproben wurden in einem Druckautoklaven der Firma Tölg mit Säuregemisch aufgeschlossen. Die Quecksilberbestimmung wurde über das flammenlose Atomabsorptionsgerät Coleman der Firma Perkin-Elmer & Co. GmbH durchgeführt. Die unterste Nachweisgrenze liegt bei $0,2 \mu\text{g Hg}^{++}/\text{l}$.

Die Proben wurden mit KMnO_4 bis zur Violettfärbung oxidiert und mit HNO_3 und H_2SO_4 (je 5 ml) angesäuert, dadurch wurde das Quecksilber in die zweiwertige Form gebracht. Ein Zusatz von Hydroxylammoniumchlorid entfernt überschüssiges KMnO_4 . Nach Zugabe von Zinn-II-Chlorid wird das zweiwertige Quecksilber zum Metall reduziert, dessen Dampf durch einleiten eines Gasstroms in die Absorptionsküvette des Gerätes transportiert und dort gemessen wird.

Zwischen organisch und anorganisch gebundenem Quecksilber konnte aus meßtechnischen Gründen nicht unterschieden werden.

Alle Mengenangaben für das Metall beziehen sich wie bei solchen Untersuchungen üblich auf das Naßgewicht des Untersuchungsmaterials, bzw. das Volumen der Wasserprobe.

Die Gültigkeit der Eichfunktion und gleichzeitig die Ausbeute bei dem Aufschlußvorgang wurden durch das Additionsverfahren geprüft. Dabei wurde von der gleichen Probe eine Bestimmte Einwaage ohne Zusatz, weitere Einwaagen mit definierten Quecksilberzusätzen aufgeschlossen. Die Ausbeute der Druckaufschlußautoklaven war $88 \pm 4\%$ (s).

Die Auswertung der Ergebnisse wurde über eine Eichkurve (Peakhöhe über Hg-Konzentration) vorgenommen. Die Eichkurve wurde mit mindestens fünf (0,5 ugHg/l bis 4 ugHg/l) verschiedenen Hg-Konzentrationen erstellt und vor jeder Messung überprüft.

Die Errechnung der Hg-Konzentrationen sowie die Säulen- und Liniendiagramme erfolgte mit dem hauseigenen Tischcomputer. Die weiteren statistischen Berechnungen wurden auf der CCP-Anlage des LRZ unter Verwendung des SPSS-Programmpaketes durchgeführt.

2.6 Bestimmung weiterer Parameter

Um unerwünschte Nebeneffekte rechtzeitig erkennen zu können, wurden in regelmäßigen Abständen pH, Gesamthärte, Leitfähigkeit, NH_3 , NH_4^+ und Stickstoff nach den Deutschen Einheitsverfahren (DEV) gemessen.

Unerwartete Veränderungen traten nicht auf. Die errechneten Mittelwerte und Streuungen sind unter Kapitel Versuche und Ergebnisse aufgeführt.

3.0 Versuche und Ergebnisse

3.1 Vorversuch

3.1.1 Durchführung

Der Vorversuch dauerte insgesamt ca. 10 Wochen und wurde mit zwei verschiedenen anorganischen Quecksilberverbindungen (Hg-Chlorid in Versuch A und Hg-Nitrat in Versuch B) durchgeführt. Parallel wurde ein Kontrollversuch ohne Quecksilber durchgeführt.

Die Wassertemperatur war $20 \pm 0,5^{\circ}\text{C}$, es herrschte O_2 -Sättigung, Strömung war 0 cm/sec.

In jedes Becken wurden 22 Kl-Karpfen eingesetzt. Die Fische wurden täglich mit einer konstanten Menge Fischfutter gefüttert. Um eine Quecksilberabsorption an übriggebliebenen Nahrungspartikeln zu verhindern wurden die Becken jeden zweiten Tag von Nahrungsresten und Abfallprodukten gesäubert.

20 Tage nach Beginn wurden in bestimmten Zeitabständen (vgl. Tab. 1) jeweils zwei Fische entnommen, um Hg-Anreicherungstrends verschiedener Organe (Kiemen, Leber, Niere und Muskelfleisch) zu registrieren. Am Versuchsende (71. Tag) wurden alle verbliebenen Fische verwertet (je 12).

3.1.2 Ergebnisse

Wie die Hg-Konzentrationswerte in der nachfolgenden Tabelle und Abbildungen 3 und 4 zeigen, kommt es im zeitlichen Verlauf der Messung zu einer zunehmenden Hg-Anreicherung in allen untersuchten Organen des Karpfens, allerdings mit gewissen Schwankungen. Die höchste Hg-Konzentration wiesen alle Organe am letzten Untersuchungstag auf.

Tab. 1 Hg-Anreicherung verschiedener Karpfenorgane nach unterschiedlicher Expositionsdauer. N=Anzahl der Fische, s_{71} =Standardabweichung am 71. Tag, Muskula.=Muskulatur.

Durchschnittliche Hg-Konzentration ($\mu\text{g Hg}^{++}/\text{g Naßgewicht}$)

Zeit (d)	N	Kontrolle	Versuch A (HgCl_2)	Versuch B ($\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$)
21. Tag	02	Kieme 0,29 Niere 0,20 Leber 0,12 Muskula. 0,11	2,30 2,80 0,45 0,24	1,23 1,30 0,30 0,12
28. Tag	02	Kieme 0,16 Niere 0,26 Leber 0,08 Muskula. 0,09	2,17 4,46 0,46 0,19	1,54 2,79 0,27 0,17
38. Tag	02	Kieme 0,18 Niere 0,26 Leber 0,10 Muskula. 0,10	1,78 2,37 0,45 0,22	1,57 3,56 0,74 0,19
48. Tag	02	Kieme 0,21 Niere 0,31 Leber 0,09 Muskula. 0,13	2,28 4,27 0,73 0,23	1,24 5,79 1,04 0,24
58. Tag	02	Kieme 0,23 Niere 0,23 Leber 0,05 Muskula. 0,9	1,54 7,15 0,91 0,24	1,32 6,89 1,67 0,16
71. Tag	12	Kieme 0,15 Niere 0,21 Leber 0,05 Muskula. 0,10	4,26 12,22 1,84 0,34	2,72 10,76 1,27 0,31
s_{71}	12	Kieme 0,06 Niere 0,11 Leber 0,02 Muskula. 0,02	1,36 3,42 0,59 0,14	0,72 2,32 0,34 0,07

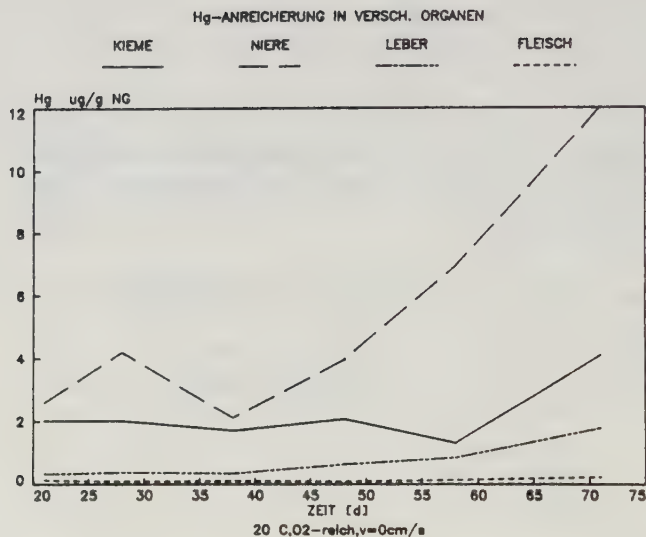


Abb.3 Versuch A: Zeitlicher Verlauf der Hg-Akkumulation (aus HgCl_2) in den untersuchten Karpfenorganen im Langzeitversuch. NG=Naßgewicht

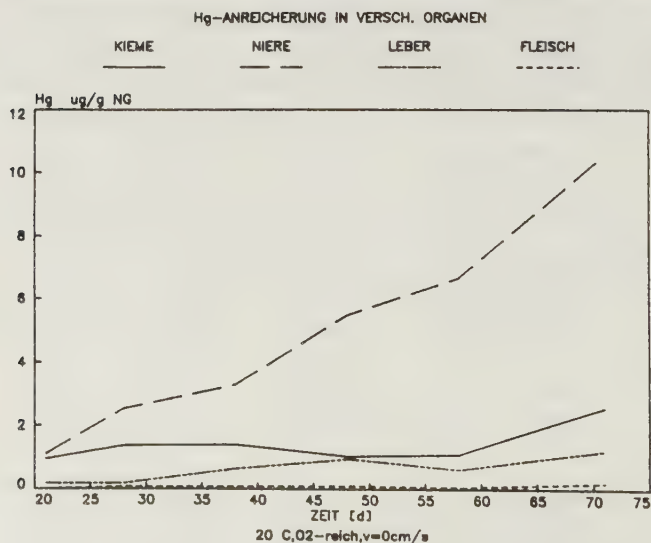


Abb.4 Versuch B: Zeitlicher Verlauf der Hg-Akkumulation (aus $\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$) in den untersuchten Karpfenorganen im Vorversuch B. NG=Naßgewicht

In beiden Versuchen liegen die Hg-Werte der Kontrollen zu allen Zeiten noch unter den Werten der Muskulatur (Fleisch), deshalb wurden sie in den Abbildungen 3 und 4 nicht berücksichtigt.

Sowohl im Versuch A als auch im Versuch B zeigt die Niere vom 21. Tag an bis zum Versuchsende die stärkste Quecksilberkonzentration. Bei HgCl_2 -Exposition (Vers. A) erreicht die Hg-Akkumulation in der Niere am 71. Tag einen Wert von 12,22, im Versuch B ($\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$ - Exposition) von 10,76 $\mu\text{g Hg/g NG}$ (=Naßgewicht).

Beim Versuch A bleibt vom 20. Tag an die Quecksilberkonzentration in der Kieme bis zum 48. Versuchstag relativ konstant. Nach einem leichten Abfall bis zum 58. Tag steigt die Quecksilberkonzentration dann bis zum Versuchsende gleichförmig auf etwa 30% des Nierenendwertes an.

Im Versuch B dauert die konstante Phase bis zum 58. Tag an, daraufhin erfolgt ein gleichförmiger Anstieg der Quecksilberkonzentration in der Kieme auf ca. 25% des Nierenwertes.

Die Leber zeigt in beiden Versuchen ähnliches Anreicherungsverhalten, die Hg-Konzentrationen am Versuchsende unterscheiden sich jedoch geringfügig voneinander: Im Versuch A erreicht der Leberwert ca. 15% des Nierenwertes, im Versuch B etwa 12%.

Die Muskulatur weist sowohl im Versuch A als auch im Versuch B die niedrigsten Hg-Konzentrationen auf (weniger als 3% des jeweiligen Nierenwertes).

Überblick über die Ergebnisse der Voruntersuchungen

. Alle 4 untersuchten Organe, Kieme, Niere, Leber und Muskulatur, zeigen deutlich höhere Hg-Werte gegenüber den Kontrollfischorganen (vgl Tab. 1)

. Die erwähnten Organe zeigen unterschiedliches Anreicherungsverhalten, jedoch läßt das Akkumulationsvermögen in beiden Versuchen ein gleichartiges Muster erkennen:

Niere >> Kieme > Leber > Muskulatur

. In allen Organen liegt der Quecksilberwert bei HgCl_2 -Exposition höher als bei $\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$ -Exposition.

. Nach 71 tägiger Hg-Exposition ist noch kein Hinweis auf einen Plateauwert in den untersuchten Karpfenorganen zu erkennen.

3.1.4 Statistische Auswertung der Ergebnisse der Vorversuche

Eine genaue Analyse für die Quecksilberwerte vom 21. - 58. Tag ist wegen des geringen Untersuchungsmaterials nicht möglich, deshalb konnten nur die Daten vom 71. Tag (Versuchsende) einer genauen statistischen Analyse unterzogen werden.

Die Prüfung der Hg-Konzentrationswerte auf Normalverteilung, mit dem Verfahren Kolmogorow-Smirnow-Test für den Einstichprobenfall ergibt, daß alle Werte von einer Normalverteilung nicht zu unterscheiden sind ($p > 0,1$) ($p_{\text{Kieme}} = 0,12$, $p_{\text{N}} = 0,21$, $p_{\text{L}} = 0,19$, $p_{\text{M}} = 0,34$).

Hierbei gehen als Variablen die Hg-Konzentrationswerte der vier untersuchten Karpfenorgane aus den 3 Versuchsreihen (Kontrolle, Versuch A und Versuch B) ein.

Im nächsten Schritt wurde, um die Ergebnisse gegeneinander absichern zu können, der Student T-Test für abhängige und unabhängige Stichproben durchgeführt. Die Unterschiede der Quecksilberwerte zwischen dem Kontrollversuch und den beiden Versuchen, sowie die Unterschiede zwischen den Versuchen A und B und die Quecksilberwerte der unter-

suchten Organe innerhalb eines Versuches sind mit Ausnahme der Muskulaturwerte auf dem 1%-Niveau signifikant. Die Hg-Werte der Muskulatur bei beiden Versuchen sind zwar nicht untereinander aber gegenüber der Kontrolle auf dem 5%-Niveau signifikant unterschiedlich.

Um der Frage nachzugehen, ob ein Zusammenhang zwischen den Hg-Konzentrationswerten der Organe vorhanden ist, wurden die einfachen Korrelationskoeffizienten für den Versuch A und B getrennt nach Pearson errechnet. Hierbei ergaben sich folgende Zusammenhänge:

Während beim Versuch A alle Ergebnisse, mit Ausnahme Kieme/Niere, auf dem 5%-Niveau signifikant sind, bestehen im Versuch B keine signifikanten Zusammenhänge (vgl. Tab. 3 und 4).

	Kieme	Niere	Leber	Muskulatur
Kieme	-			
Niere	r= 0,362 p= 0,247	-		
Leber	r= 0,714 p= 0,009	r= 0,596 p= 0,041	-	
Muskula.	r= 0,625 p= 0,03	r= 0,578 p= 0,049	r= 0,863 p= 0,001	-

Tab.2 Korrelationskoeffizienten für Hg-Chloridversuch (Vers. A) N=12

	Kieme	Niere	Leber	Muskulatur
Kieme	-			
Niere	r=-0,239 p= 0,454	-		
Leber	r= 0,285 p= 0,369	r=-0,122 p= 0,706	-	
Muskula.	r= 0,265 p= 0,406	r=-0,181 p= 0,575	r= 0,548 p= 0,065	-

Tab.3 Korrelationskoeffizienten für Hg-Nitratversuch (Vers. 8) N= 12

Zusammenfassung der Ergebnisse des Vorversuchs

. Die Auswertung der Ergebnisse ergab für Hg-Chlorid ein stärkeres Anreicherungsverhalten als für Nitrat, dies ist bereits in den ersten 28 Tagen deutlich zu erkennen.

. Im Gegensatz zur Quecksilbernitratsbelastung zeigt sich bei Hg-Chloridbelastung eine positive Korrelation zwischen den Hg-Konzentrationswerten der untersuchten Organe (außer Niere/Kieme) auf dem 5%-Niveau.

Im Versuch B (Hg-Nitrat) bestehen keine signifikanten Zusammenhänge, da das Akkumulationsverhalten der untersuchten Organe bei einer Hg-Nitratbelastung nicht so deutlich voneinander abweicht wie bei Hg-Chloridbelastung.

Die beiden genannten Eigenschaften der anorganischen Quecksilberverbindung HgCl_2 führen zu der Entscheidung, sie bei den Hauptversuchen als Kontaminant zu verwenden.

. Es liegt bereits am 21. Tag der Hg-Chloridexposition in den Organen eine relativ hohe Hg-Konzentration vor, deshalb ist es sinnvoll, bereits im Anfangsstadium der Versuche mit der Erfassung der Quecksilberakkumulation zu beginnen. Da nach 35 Tagen keine wesentlichen Verschiebungen in der Reaktion auftreten, schien es gerechtfertigt, in den Hauptversuchen die Zeit abzukürzen.

Nach 71-tägiger Quecksilberwirkung ist noch kein Hinweis auf eine Quecksilbersättigung (Plateauwert) in den untersuchten Organen zu erkennen.

. Nach der durchgeführten Pearson-Korrelation läßt sich kein einzelnes Organ eindeutig als "Indikatororgan" für den Hg-Verschmutzungsgrad der Gewässer angeben. Es bestehen zwar Zusammenhänge, aber sie sind schwach (besonders bei Hg-Nitrat) und oft nicht signifikant. Somit ergibt sich die Notwendigkeit, sich eingehender mit der Frage der Zuverlässigkeit der "Indikatororgane" zu beschäftigen, (d.h. Untersuchung mehrerer Organe ist gegebenenfalls erforderlich).

Tab. 4 Durchschnittswerte der chemischen Meßdaten. K= Kontrolle, V= Versuch

	K	V
pH	$7,63 \pm 0,15$ (K)	$7,62 \pm 0,13$ (V)
Gesamthärte	$16,46 \pm 0,07$ (K)	$16,49 \pm 0,07$ (V)
Carbonhärte	$14,80 \pm 0,03$ (K)	$14,76 \pm 0,03$ (V)
Leitfähigkeit	(400 ± 13) uS/cm	
NH_4^+	$< 0,03$ mg/l (K,V)	
NO_3^-	$< 4,83$ mg/l (K,V)	
NO_2^-	$< 0,01$ mg/l (K,V)	

3.2 Hauptversuche

3.2.1 Durchführung der einzelnen Versuche

Insgesamt wurden 8 Versuche durchgeführt, jeweils über einen Zeitraum von 34 Tagen. Die Anzahl der Versuche ergab sich dadurch, daß für jeden Parameter (Sauerstoff, Temperatur und Strömung) zwei Ausprägungen gewählt wurden und somit je Parameterausprägung 2 Versuche erforderlich wurden.

In der folgenden Abbildung 5 liegen die Versuche mit jeweils einem gleichen Parameter auf einer Fläche eines Würfels.

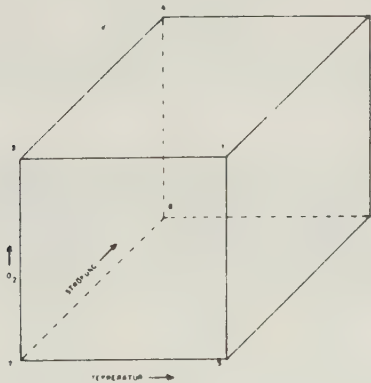


Abb.5 Übersicht der Parameterkombinationen. Die Versuche 1,5,7,3 liegen auf der vorderen Begrenzungsfläche, d.h. der Fläche, in der die Strömungsgeschwindigkeit $v=0$ cm/sec ist. Die Versuche 2,6,8,4 liegen auf der Fläche hoher Strömungswerte. In ähnlicher Weise können die restlichen Kombinationen mit jeweils einem gleichen Parameter auf den entsprechenden Begrenzungsflächen des Würfels gefunden werden.

Um eine Absicherung gegenüber einer eventuellen Anreicherung ohne Quecksilbergabe, z.B. über das Leitungswasser oder Nahrung zu erhalten wurde neben jedem Versuch ein Parallelversuch (Kontrolle) ohne Quecksilberbelastung durchgeführt. In allen Kontrollen lag die Quecksilberkonzentration der untersuchten Organe (Kiemen, Niere, Leber, Muskulatur) an der unteren Nachweisgrenze und konnte jedesmal signifikant gegen die Versuche abgesichert werden.

Für jeden Versuch wurden 25 möglichst gleichgroße und gleichschwere Fische ausgewählt, gewogen und in die Versuchsbecken eingesetzt. Um die Ergebnisse nicht durch Akklimatisationsprozesse zu verfälschen, wurden die Fische vor Versuchsbeginn ca. 14 Tage schrittweise an die erforderlichen Parameter Temperatur, Sauerstoff und Strömung des Versuches angepaßt.

Die Fische wurden täglich, wie bereits erwähnt (vgl. Vorversuch), gefüttert, die Becken wie bei den Voruntersuchungen gesäubert.

Um den Verlauf der Hg-Anreicherung in den verschiedenen Organen vom Beginn der Belastung an mitverfolgen zu können, wurden je 2 Fische in Zeitabständen entnommen (vgl. Tab. jeweiliger Versuche). Nach 34 Tagen (Versuchsende) wurden die restlichen 13 Fische herausgenommen, gewogen und, wie bereits geschildert, für Hg-Analysen vorbereitet.

Bei allen Versuchen wurde das Wasser auf Leitfähigkeit, pH Gesamthärte und Carbonhärte hin untersucht, außerdem wurden die Konzentrationen der folgenden Ionen in unregelmäßigen Zeitabständen bestimmt. Die Meßwerte (Tab. 4) zeigten bei den 8 Versuchen eine maximale Differenz von etwa 6%, daher kann davon ausgegangen werden, daß das Anreicherungsverhalten des untersuchten Schadstoffes dadurch nicht beeinflusst wurde.

VERSUCH 1 20°C, O₂-reich, keine Strömung

Versuchsbedingungen:

PARAMETER	KONTROLLE (K)		VERSUCH (V)	
Hg ²⁺ -Konzentration im Wasser	-	µg Hg/l	0.5	µg Hg/l
Temperatur	(20 ± 0.5)	°C	(20 ± 0.5)	°C
Sauerstoffkonzentration	8.0 ± 0.4	mg O ₂ /l	8.6 ± 0.5	mg O ₂ /l
Strömungsgeschwindigkeit	0	cm/sec	0	cm/sec

Durchschnittliche Hg-Konzentrationen (µg Hg/g Naßgewicht)

Zeit/ Tage	N	Kiemen		Niere		Leber		Muskulatur	
		K	V	K	V	K	V	K	V
4	2	0.02	0.53	0.08	0.12	0.05	0.08	0.06	0.08
7	2	0.05	1.10	0.06	0.57	0.07	0.26	0.09	0.28
12	2	0.07	1.29	0.07	0.63	0.08	0.49	0.08	0.09
17	2	0.06	1.07	0.08	1.35	0.06	0.35	0.14	0.16
21	2	0.03	0.74	0.05	1.51	0.03	0.47	0.07	0.11
27	2	0.09	1.31	0.09	1.23	0.11	0.61	0.14	0.29
34	13	0.05	0.88	0.07	1.93	0.06	0.56	0.09	0.21
s ₃₄		0.02	0.10	0.03	0.38	0.01	0.11	0.04	0.08

Tab. (5) Quecksilberanreicherung verschiedener Organe nach unterschiedlicher Expositionsdauer.

N= Anzahl der Fische, K= Kontrolle, V= Versuch,

s₃₄ = Standardabweichung am Tag 34

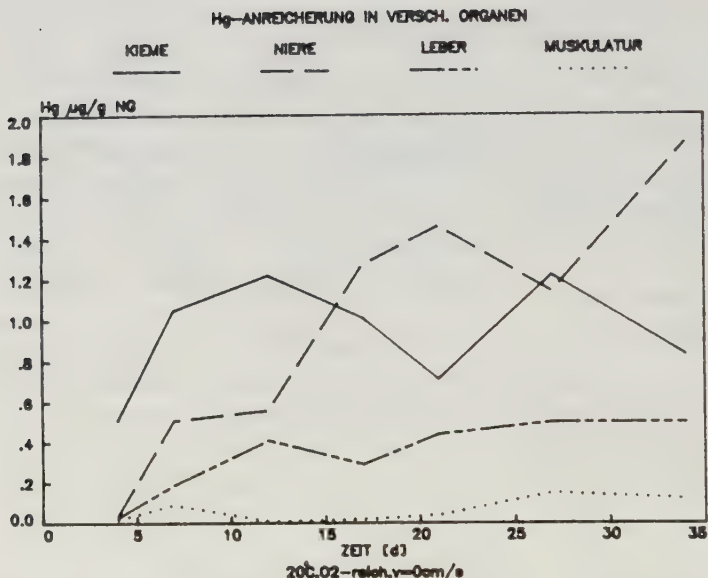


Abb. 6 Versuch 1 Zeitlicher Verlauf der Hganreicherung in den untersuchten Organen beim Karpfen. NG =Naßgewicht.

Die stärkste Anreicherung innerhalb der ersten 12 Tage ist bei de Kiemen zu erkennen. Schon nach 4 Tagen erreicht die Hg-Konzentration hier einen Wert von 0,53 ugHg/gNG. Vom 12. Tag an zeigt die Hg-Konzentration deutliche Schwankungen.

Die Quecksilberkonzentration der Niere überschreitet die der Kiemen ab dem 12. Tag, am 34. Tag liegt der Hg-Gehalt der Niere um etwa 100% höher als der der Kiemen.

Die Schadstoffkonzentration in der Leber steigt bis zum 34. Tag kontinuierlich bis auf ca. 25% des Nierenwertes an.

In der Muskulatur ist der Anstieg der Hg-Konzentration im Vergleich zu den übrigen Organen am geringsten, er erreicht am 34. Tag etwa 12% des Kiemenwertes.

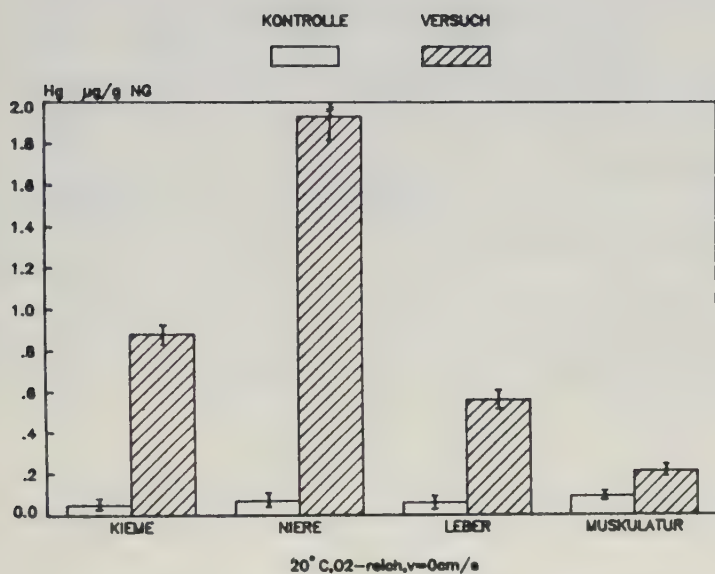


Abb. 7 Versuch 1 Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen nach 34-tägiger Hg-Exposition (aus HgCl₂). NG = Naßgewicht.

Abbildung 7 zeigt die Quecksilberkonzentration der Organe Kieme, Niere, Leber und Muskulatur am Versuchsende. Aus der Säulengraphik ist ersichtlich, daß die Versuchsfische gegenüber den Kontrollfischen signifikant unterschiedliche Quecksilberwerte haben ($\alpha = 0,05$ bzw. $0,01$).

Die untersuchten Organe der Versuchsfische weisen ein deutlich voneinander abweichendes Anreicherungsverhalten auf ($\alpha = 0,01$).

Der Graphik ist zu entnehmen, daß die Niere unter den im Versuch 1 gegebenen Bedingungen das stärkste Anreicherungsverhalten zeigt, an 2., 3. und 4. Stelle stehen Kieme, Leber und Muskulatur.

Akkumulationsvermögen:

Niere > Kieme > Leber > Muskulatur

VERSUCH 2 20°C, O₂-reich, Strömung

Versuchsbedingungen:

PARAMETER	KONTROLLE (K)		VERSUCH (V)	
Hg ²⁺ -Konzentration im Wasser	-	µg Hg/l	0.5	µg Hg/l
Temperatur	(20 ± 0.5)	°C	(20 ± 0.5)	°C
Sauerstoffkonzentration	8.24 ± 0.27	mg O ₂ /l	8.33 ± 0.16	mg O ₂ /l
Strömungsgeschwindigkeit	10	cm/sec	10	cm/sec

Durchschnittliche Hg-Konzentrationen (µg Hg/g Naßgewicht)

Zeit/ Tage	N	Kiemen		Niere		Leber		Muskulatur	
		K	V	K	V	K	V	K	V
4	2	0.02	0.21	0.02	0.05	0.06	0.05	0.06	0.10
7	2	0.06	0.46	0.06	0.22	0.06	0.11	0.09	0.10
12	2	0.07	0.25	0.08	0.17	0.08	0.17	0.10	0.12
17	2	0.06	0.64	0.07	0.42	0.06	0.26	0.14	0.14
21	2	0.04	0.70	0.04	0.40	0.03	0.33	0.08	0.09
27	2	0.10	1.08	0.10	0.78	0.11	0.45	0.14	0.18
34	13	0.06	1.07	0.07	0.96	0.06	0.52	0.07	0.15
s ₃₄		0.03	0.16	0.03	0.11	0.02	0.06	0.01	0.04

Tab. (6) Quecksilberanreicherung verschiedener Organe nach unterschiedlicher Expositionsdauer.

N= Anzahl der Fische, K= Kontrolle, V= Versuch,

s₃₄= Standardabweichung am Tag 34

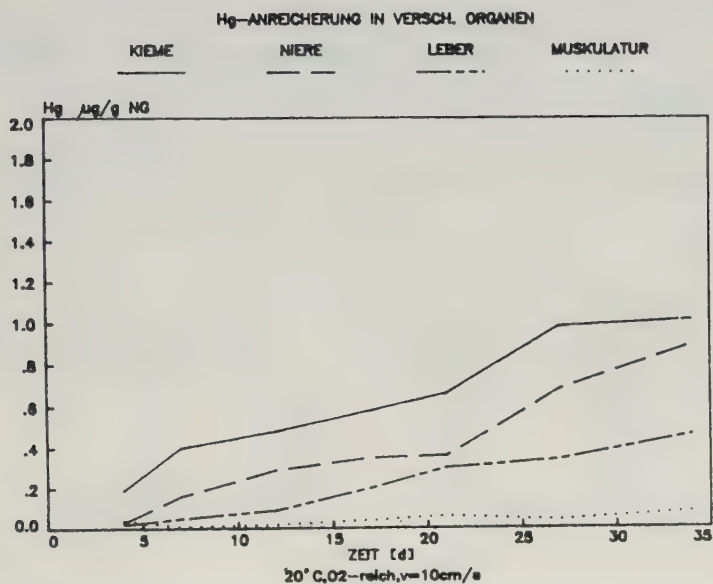


Abb. 8 Versuch 2 Zeitlicher Verlauf der Hg-Anreicherung in den untersuchten Organen beim Karpfen. NG = Naßgewicht.

Vom 4. Tag an bis zum Versuchsende zeigen die Kiemen eine deutlich höhere Hg-Konzentration gegenüber den anderen Organen. Ab 27. Tag stagniert die Hg-Akkumulation, so daß die gemessenen Quecksilberwerte bis zum 34. Tag kaum voneinander abweichen.

Der Nierenwert steigt bis zum Versuchsende auf etwa 95% des Kiemenwertes an.

Die Leber zeigt erst nach 12 Tagen eine merkliche Schadstoffkonzentration. Der Hg-Wert steigt bis zum 34. Tag auf etwa 50% des Kiemenwertes an.

Die Muskulaturwerte bleiben bis zum Versuchsende relativ konstant.

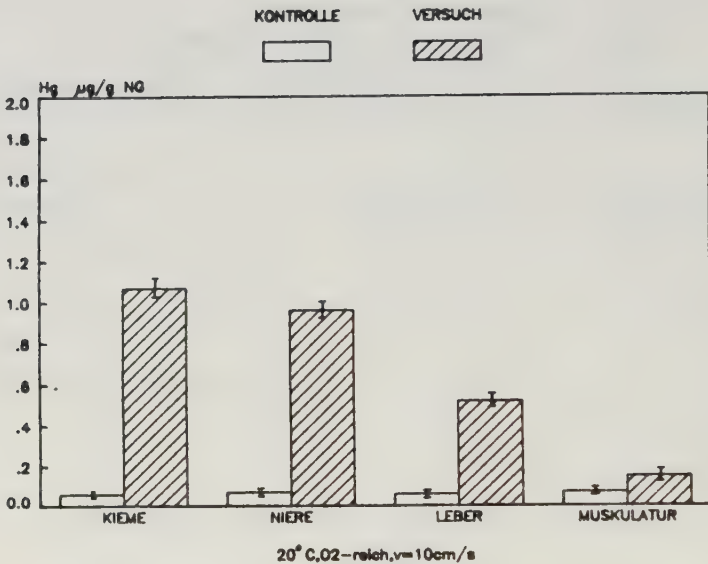


Abb. 9 Versuch 2 Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen nach 34-tägiger Hg-Exposition. NG = Naßgewicht.

Die Graphik zeigt, daß die Kiemen unter den im Versuch 2 gegebenen Bedingungen das stärkste Anreicherungsverhalten aufweisen. An 2., 3. und 4. Stelle stehen Niere, Leber und Muskulatur.

Der t-Test für unabhängige Stichproben bestätigt die dargestellten Ergebnisse. Kiemen und Niere zeigen auf dem 5% Niveau einen signifikanten Unterschied, während die anderen Organe auf dem 1% Niveau signifikant unterschiedliche Quecksilberwerte haben.

Akkumulationsvermögen:

Kieme > Niere > Leber > Muskulatur

VERSUCH 3 10°C, O₂-reich, keine Strömung

Versuchsbedingungen:

PARAMETER	KONTROLLE (K)		VERSUCH (V)	
Hg ²⁺ -Konzentration im Wasser	-	µg Hg/l	0.5	µg Hg/l
Temperatur	(10 ± 1)	°C	(10 ± 1)	°C
Sauerstoffkonzentration	9.94 ± 0.36	mg O ₂ /l	10.24 ± 0.23	mg O ₂ /l
Strömungsgeschwindigkeit	0	cm/sec	0	cm/sec

Durchschnittliche Hg-Konzentrationen (µg Hg/g Naßgewicht)

Zeit/ Tage	N	Kiemen		Niere		Leber		Muskulatur	
		K	V	K	V	K	V	K	V
4	2	0.03	0.21	0.04	0.05	0.05	0.05	0.10	0.24
7	2	0.05	0.19	0.07	0.06	0.04	0.07	0.18	0.21
12	2	0.05	0.43	0.04	0.07	0.04	0.06	0.13	0.18
17	2	0.04	0.89	0.03	0.15	0.04	0.10	0.18	0.22
21	2	0.08	1.13	0.05	0.29	0.09	0.14	0.17	0.18
27	2	0.03	1.19	0.03	0.24	0.03	0.09	0.17	0.17
34	13	0.03	1.46	0.03	0.31	0.03	0.15	0.13	0.21
s ₃₄		0.02	0.32	0.06	0.01	0.01	0.04	0.04	0.05

Tab. (7) Quecksilberanreicherung verschiedener Organe nach unterschiedlicher Expositionsdauer.

N= Anzahl der Fische, K= Kontrolle, V= Versuch,

s₃₄= Standardabweichung am Tag 34

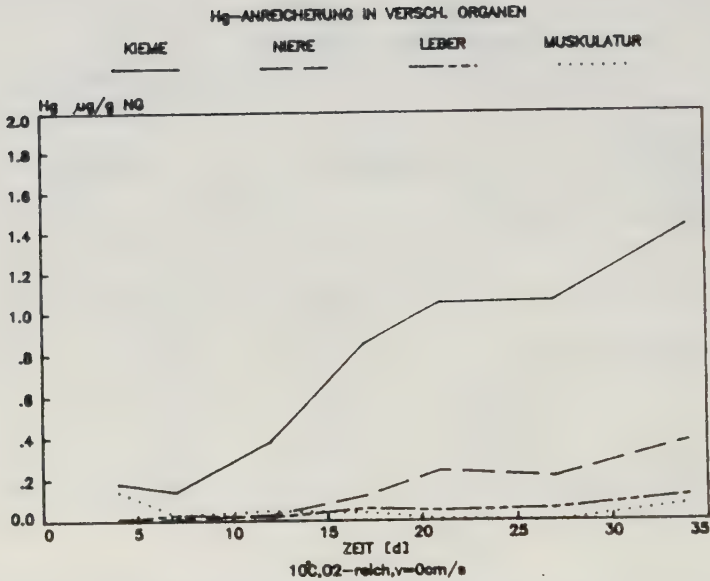


Abb.10 Versuch 3 Zeitlicher Verlauf der Hg-Anreicherung in den untersuchten Organen beim Karpfen. NG = Naßgewicht.

Der Kiemenwert steigt bis zum 21. Tag stark an (auf 1,13 µgHg/gNG), bis zum 27. Tag ist der Anstieg relativ gering. Vom 27. Tag bis zum Versuchsende ist wieder stärkeres Anwachsen des Kiemenwertes zu beobachten.

Die Niere zeigt erst nach 17 Tagen eine deutliche Schadstoffkonzentration und erreicht zum Versuchsende 25% der Kiemenkonzentration.

Leber und Muskulatur zeigen keine deutliche Anreicherung, die Werte beider Organe betragen am 34. Tag etwa 8-10% des Kiemenwertes.

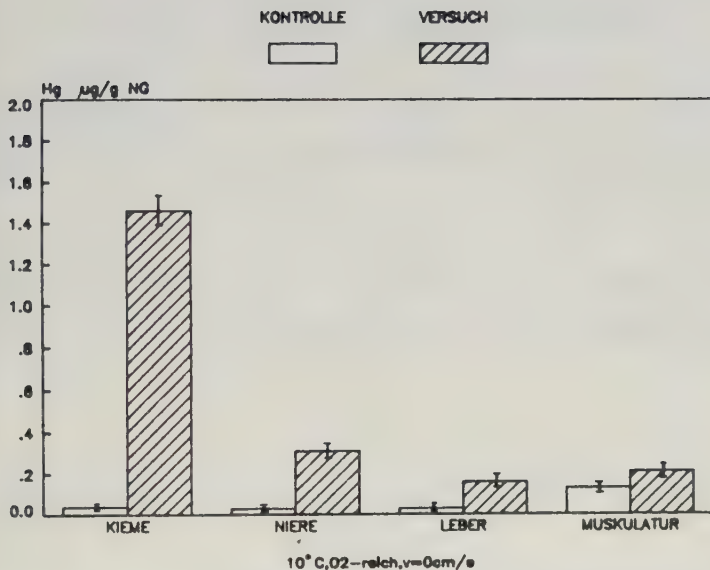


Abb. 11 Versuch 3 Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen nach 34-tägiger Hg-Exposition. NG = Naßgewicht.

Wie aus der Säulengraphik zu entnehmen ist, haben die Kiemen am 34. Tag der Schadstoffexposition im Vergleich zu den restlichen Organen die höchste Quecksilberkonzentration, gefolgt von Niere, Muskulatur und Leber. Der Muskulaturwert der Versuchsfische wird aber durch den hohen Muskulaturwert der Kontrollfische stark erniedrigt.

Der t-Test für unabhängige Stichproben, für die Wertepaare: Kiemen, Niere, Leber und Muskulatur am 34. Tag zeigt außer für Leber und Muskulatur ein signifikant unterschiedliches Anreicherungsverhalten der Organe (auf 1% Niveau sign.).

Akkumulationsvermögen:

Kieme > Niere > Leber = Muskulatur

VERSUCH 4 10 °C, O₂-reich, Strömung

Versuchsbedingungen:

PARAMETER	KONTROLLE (K)		VERSUCH (V)	
Hg ²⁺ -Konzentration im Wasser	-	µg Hg/l	0.5	µg Hg/l
Temperatur	(10 ± 1)	°C	(10 ± 1)	°C
Sauerstoffkonzentration	9.81 ± 0.47	mg O ₂ /l	10.40 ± 0.41	mg O ₂ /l
Strömungsgeschwindigkeit	10	cm/sec	10	cm/sec

Durchschnittliche Hg-Konzentrationen (µg Hg/g Naßgewicht)

Zeit/ Tage	N	Kiemen		Niere		Leber		Muskulatur	
		K	V	K	V	K	V	K	V
4	-	-	-	-	-	-	-	-	-
7	2	0.03	0.29	0.05	0.06	0.03	0.04	0.07	0.10
12	2	0.03	0.74	0.03	0.17	0.04	0.07	0.10	0.13
17	2	0.06	0.93	0.05	0.34	0.04	0.14	0.07	0.17
21	2	0.04	0.84	0.04	0.28	0.03	0.10	0.07	0.09
27	2	0.04	1.28	0.04	0.44	0.05	0.16	0.06	0.14
34	13	0.06	0.90	0.07	0.40	0.07	0.17	0.11	0.14
s ₃₄		0.02	0.21	0.01	0.10	0.02	0.07	0.03	0.04

Tab. (8) Quecksilberanreicherung verschiedener Organe nach unterschiedlicher Expositionsdauer.

N= Anzahl der Fische, K= Kontrolle, V= Versuch,

s₃₄= Standardabweichung am Tag 34

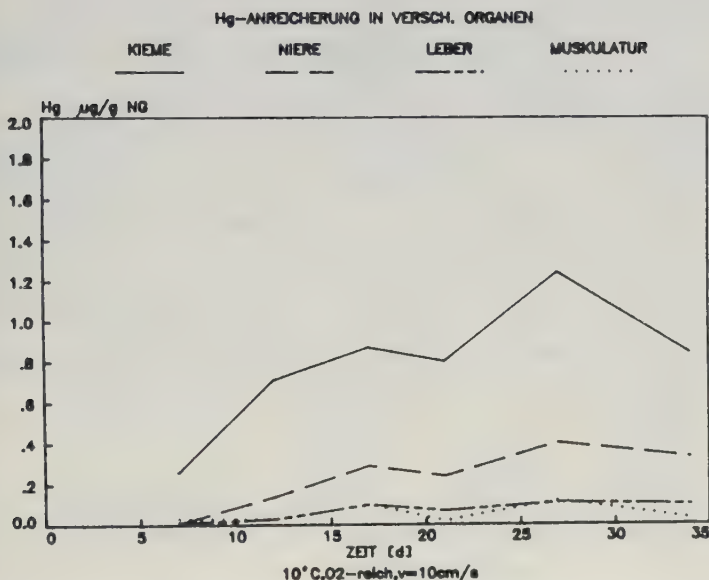


Abb. 12 Versuch 4 Zeitlicher Verlauf der Hg-Anreicherung in den untersuchten Organen beim Karpfen. NG = Naßgewicht.

Aus technischen Gründen konnte am 4. Tag keine Probenentnahme erfolgen.

Die Kiemenwerte nehmen während der ersten 17 Tage relativ gleichmäßig zu, nach einer leichten Abnahme bis zum 21. Tag zeigt sich am 27. Tag ein Maximum. Bis zum 34. Tag fällt die Hg-Konzentration etwa auf den Wert vom 17. Tag.

Bei der Niere zeigt sich eine kontinuierliche Zunahme der Hg-Konzentration vom 7. bis zum 12. Tag. Bis zum Versuchsende am 34. Tag erreicht der Nierenwert etwa 40 % des Kiemenwertes.

Die Leberwerte steigen bis zum 17. Tag auf etwa 20% des Kiemenwertes an und bleiben dann bis zum 34. Tag relativ konstant.

Die Muskulaturwerte sind den Leberwerten bis zum 27. Tag ähnlich, fallen jedoch bis zum 34. Tag auf ihren Anfangswert.

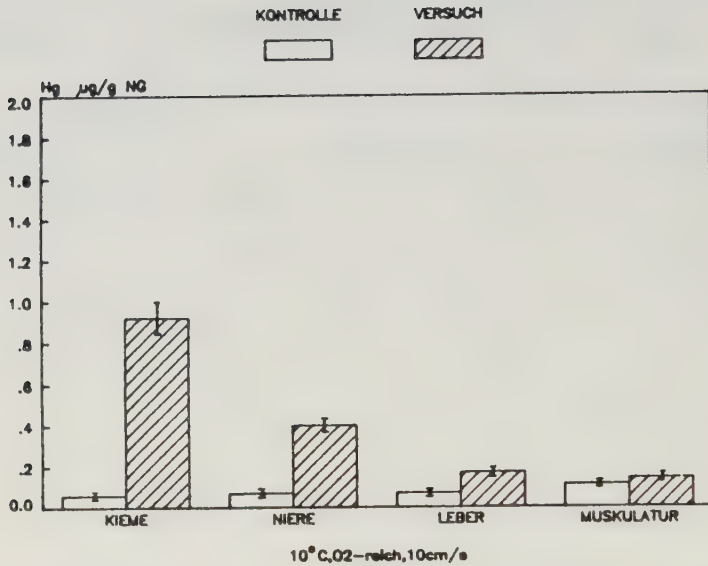


Abb. 13 Versuch 4 Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen nach 34-tägiger Hg-Exposition. NG = Naßgewicht.

Die Abbildung 13 zeigt für die Kiemen den größten Anreicherungs Wert, an 2. Stelle steht die Niere.

Leber und Muskulatur befinden sich an der dritten Stelle, zwischen ihnen besteht keine Signifikanz. Die auftretenden Signifikanzen zwischen der drei Stellen liegen auf dem 1% Niveau.

Akkumulationsvermögen:

Kieme > Niere > Leber = Muskulatur

VERSUCH 5 20°C, O₂-arm, keine Strömung

Versuchsbedingungen:

PARAMETER	KONTROLLE (K)		VERSUCH (V)	
Hg ²⁺ -Konzentration im Wasser	-	µg Hg/l	0.5	µg Hg/l
Temperatur	(20 ± 0.5)	°C	(20 ± 0.5)	°C
Sauerstoffkonzentration	4.5 ± 0.02	mg O ₂ /l	4.5 ± 0.02	mg O ₂ /l
Strömungsgeschwindigkeit	0	cm/sec	0	cm/sec

Durchschnittliche Hg-Konzentrationen (µg Hg/g Naßgewicht)

Zeit/ Tage	N	Kiemen		Niere		Leber		Muskulatur	
		K	V	K	V	K	V	K	V
4	2	0.03	0.53	0.04	0.13	0.04	0.07	0.08	0.12
7	2	0.03	0.56	0.05	0.14	0.07	0.09	0.07	0.11
12	2	0.03	0.51	0.05	0.18	0.03	0.13	0.09	0.13
17	2	0.10	0.60	0.08	0.28	0.07	0.17	0.09	0.11
21	2	0.06	0.99	0.08	0.48	0.06	0.29	0.10	0.13
27	2	0.06	0.91	0.05	0.59	0.07	0.33	0.12	0.19
34	13	0.07	1.11	0.03	0.84	0.06	0.41	0.08	0.16
s ₃₄		0.03	0.06	0.02	0.08	0.02	0.04	0.03	0.02

Tab. (9) Quecksilberanreicherung verschiedener Organe nach unterschiedlicher Expositionsdauer.

N= Anzahl der Fische, K= Kontrolle, V= Versuch,

s₃₄= Standardabweichung am Tag 34

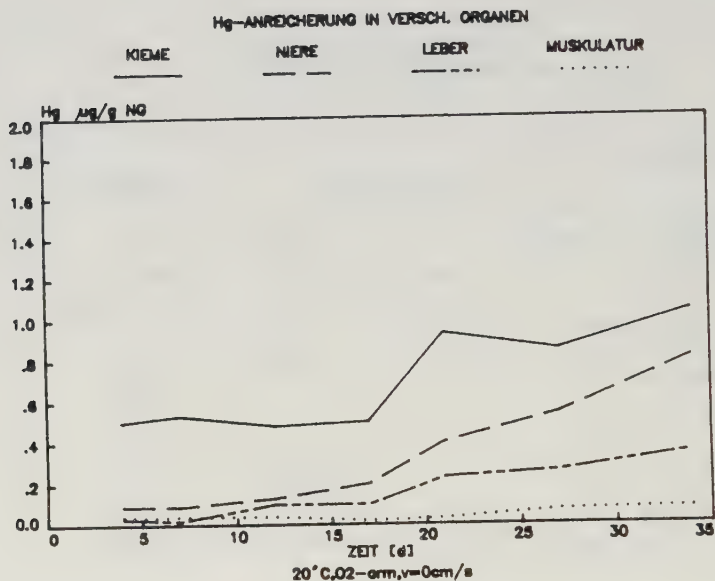


Abb. 14 Versuch 5 Zeitlicher Verlauf der Hg-Anreicherung in den untersuchten Organen beim Karpfen. NG = Naßgewicht.

Die Kiemen zeigen bereits am 4. Tag eine hohe Hg-Konzentration (0,5 µgHg/gNG), bis zum 21. Tag verdoppelt sich der Kiemenwert und bleibt bis zum 34. Tag relativ konstant.

Bis zum 12. Tag ist kein deutlicher Anstieg des Nierenwertes zu erkennen. Vom 12. bis zum, 34. Tag steigt die Schadstoffkonzentration der Niere stetig an und erreicht etwa 80% des Kiemenwertes.

Die Hg-Anreicherung in der Leber erfolgt bis zum 21. Tag ungleichmäßig. Ab diesem Zeitpunkt wächst die Hg-Konzentration gleichförmig an, bis sie am 34. Tag etwa 30% der Hg-Konzentration in der Kieme erreicht.

In der Muskulatur ist erst ab dem 27. Tag eine leichte Hg-Konzentration nachzuweisen (weniger als 10% des Kiemenwertes), die bis zum Versuchsende konstant bleibt.

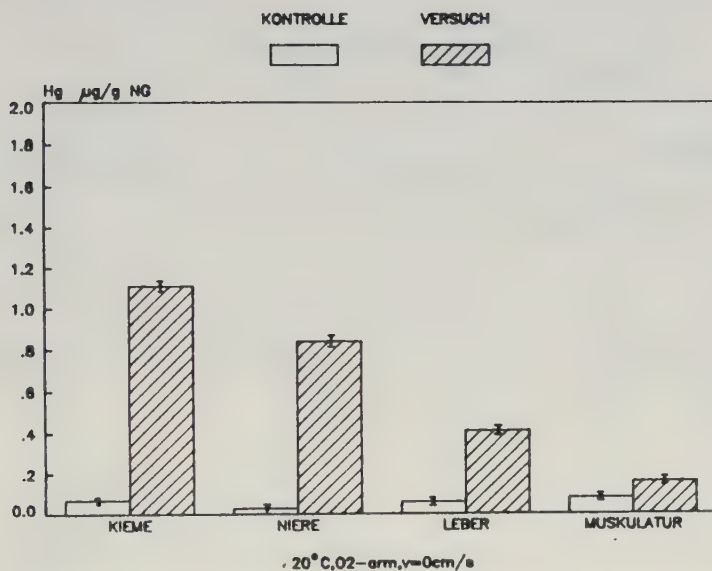


Abb. 15 Versuch 5 Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen nach 34-tägiger Hg-Exposition. NG = Naßgewicht.

Aus der Säulengraphik ist zu entnehmen, daß die Kiemen im Versuch 5 das stärkste Anreicherungsverhalten unter den vier Organen zeigen, gefolgt von Niere, Leber und Muskulatur.

Die Signifikanz liegt jeweils auf dem 1% Niveau.

Akkumulationsvermögen:

Kieme > Niere > Leber > Muskulatur

VERSUCH 6 20°C, O₂-arm, Strömung

Versuchsbedingungen:

PARAMETER	KONTROLLE (K)		VERSUCH (V)	
Hg ²⁺ -Konzentration im Wasser	-	µg Hg/l	0.5	µg Hg/l
Temperatur	(20 ± 0.5)	°C	(20 ± 0.5)	°C
Sauerstoffkonzentration	4.5 ± 0.02	mg O ₂ /l	4.5 ± 0.02	mg O ₂ /l
Strömungsgeschwindigkeit	10	cm/sec	10	cm/sec

Durchschnittliche Hg-Konzentrationen (µg Hg/g Naßgewicht)

Zeit/ Tage	N	Kiemen		Niere		Leber		Muskulatur	
		K	V	K	V	K	V	K	V
4	2	0.07	1.04	0.10	0.33	0.06	0.24	0.10	0.26
7	2	0.05	0.88	0.08	0.28	0.09	0.16	0.11	0.13
12	2	0.09	1.35	0.09	0.69	0.11	0.34	0.12	0.16
17	2	0.03	1.52	0.04	0.77	0.04	0.46	0.12	0.15
21	2	0.09	1.90	0.07	1.50	0.09	0.58	0.13	0.25
27	2	0.03	1.72	0.04	1.43	0.08	0.79	0.06	0.23
34	13	0.06	1.79	0.06	1.95	0.06	0.98	0.08	0.28
s ₃₄		0.03	0.14	0.01	0.14	0.03	0.05	0.03	0.04

Tab. (10) Quecksilberanreicherung verschiedener Organe nach unterschiedlicher Expositionsdauer.

N= Anzahl der Fische, K= Kontrolle, V= Versuch,

s₃₄ = Standardabweichung am Tag 34

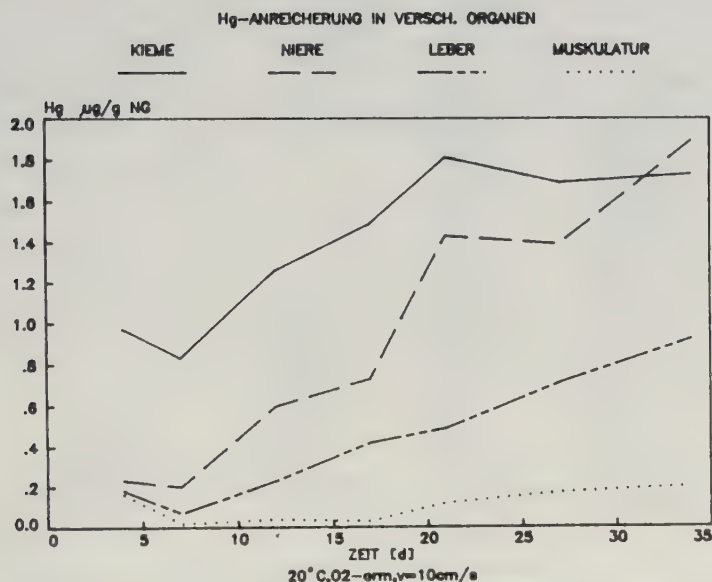


Abb. 16 Versuch 6 Zeitlicher Verlauf der Hg-Anreicherung in den untersuchten Organen beim Karpfen. NG = Naßgewicht.

Bereits am 4. Tag ist in den Kiemen ein hoher Hg-Gehalt feststellbar. Am 21. Tag erreicht die Hg-Konzentration in den Kiemen ein Maximum (1,9 $\mu\text{gHg/gNG}$) und fällt dann bis zum 27. Tag auf 1,7 $\mu\text{gHg/gNG}$ ab, bis zum Versuchsende tritt keine nennenswerte Veränderung auf. In den ersten 17 Versuchstagen liegt der Nierenwert etwa 50% unter dem Kiemenwert, von da an ist bis zum 21. Tag eine starke Zunahme der Hg-Menge zu verzeichnen. Der am 21. Tag erreichte Schadstoffwert steigt erst wieder ab dem 27. Versuchstag an. Am Versuchsende liegt der Nierenwert ca. 8% über dem Kiemenwert. Die Leber nimmt den Schadstoff ständig auf und erreicht am 34. Tag einen Hg-Wert von 0,98 $\mu\text{gHg/gNG}$, dies entspricht ca. 40% des Kiemenwertes. Der anfänglich relativ hohe Schadstoffwert der Muskulatur ist vom 7. Tag bis zum 17. Tag nicht zu beobachten, bis zum 21. Tag erfolgt ein Anstieg, nach diesem Zeitpunkt bis zum Versuchsende ist nur eine geringe Steigerung zu erkennen. Am 34. Tag erreicht der Muskulaturwert etwa 8% des Kiemenwertes.

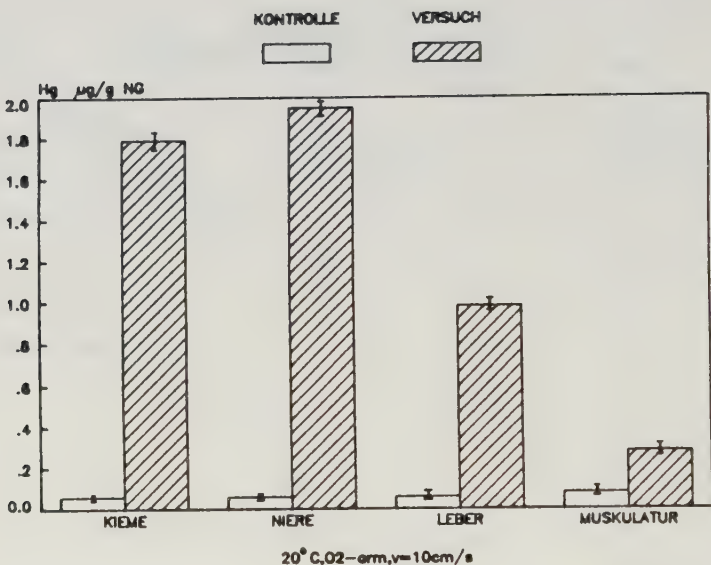


Abb. 17 Versuch 6 Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen nach 34-tägiger Hg-Exposition. NG = Naßgewicht.

Der Säulengraphik zufolge ist die größte Hg-Anreicherung in der Niere zu finden. An 2., 3. und 4. Stelle liegen Kieme, Leber und Muskulatur.

Zwischen Niere und Kieme liegt die Signifikanz auf dem 5% Niveau, ansonsten erreicht die Signifikanz das 1% Niveau.

Akkumulationsvermögen:

Niere > Kieme > Leber > Muskulatur

VERSUCH 7 10°C, O₂-arm, keine Strömung

Versuchsbedingungen:

PARAMETER	KONTROLLE (K)		VERSUCH (V)	
Hg ²⁺ -Konzentration im Wasser	-	µg Hg/l	0.5	µg Hg/l
Temperatur	(10 ± 0.5)	°C	(10 ± 0.5)	°C
Sauerstoffkonzentration	4.5 ± 0.02	mg O ₂ /l	4.5 ± 0.02	mg O ₂ /l
Strömungsgeschwindigkeit	0	cm/sec	0	cm/sec

Durchschnittliche Hg-Konzentrationen (µg Hg/g Naßgewicht)

Zeit/ Tage	N	Kiemen		Niere		Leber		Muskulatur	
		K	V	K	V	K	V	K	V
4	2	0.06	0.35	0.05	0.18	0.08	0.13	0.09	0.18
7	2	0.05	0.44	0.07	0.26	0.06	0.15	0.07	0.08
12	2	0.06	0.98	0.08	0.34	0.09	0.16	0.10	0.15
17	2	0.06	1.10	0.07	0.36	0.08	0.21	0.11	0.20
21	2	0.05	1.44	0.08	0.47	0.09	0.24	0.12	0.16
27	2	0.05	1.34	0.08	0.54	0.08	0.23	0.09	0.17
34	13	0.07	1.85	0.08	0.72	0.09	0.25	0.11	0.19
s ₃₄		0.01	0.04	0.01	0.08	0.04	0.04	0.02	0.03

Tab. (11) Quecksilberanreicherung verschiedener Organe nach unterschiedlicher Expositionsdauer.

N= Anzahl der Fische, K= Kontrolle, V= Versuch,

s₃₄= Standardabweichung am Tag 34

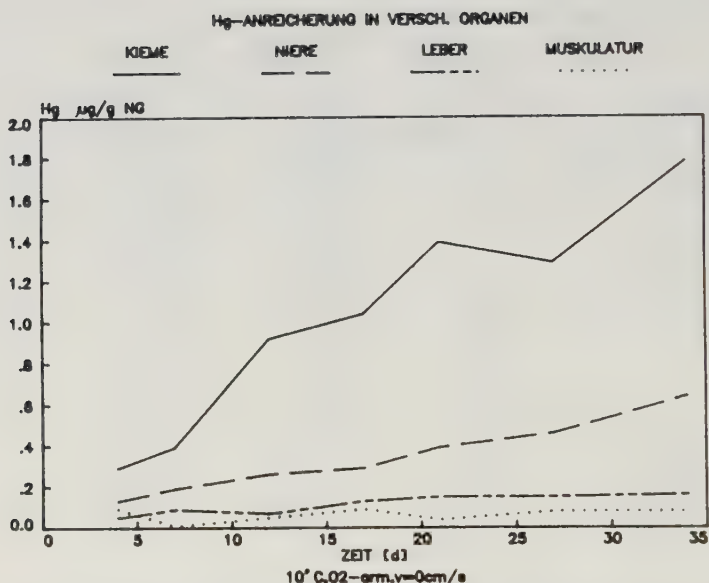


Abb. 18 Versuch 7 Zeitlicher Verlauf der Hg-Anreicherung in den untersuchten Organen beim Karpfen. NG = Naßgewicht.

In den ersten drei Versuchswochen ist in den Kiemen ein relativ stetiges Anwachsen der Hg-Konzentration zu beobachten. Vom 21. Tag an verringert sich die Hg-Konzentration geringfügig. Ab dem 27. Tag ist bis zum Versuchsende ein deutlicher Zuwachs zu verzeichnen. Der Kiemenwert liegt am 34. Tag bei 1,78 µgHg/gNG.

Der Nierenwert nimmt während der Versuchsdauer etwa gleichförmig zu und erreicht am 34. Tag etwa 30% des Kiemenwertes.

Die Leber- und Muskulaturwerte bleiben über die gesamte Versuchsdauer verhältnismäßig konstant. Am 34. Tag erreichen beide weniger als 10% des Kiemenwertes, wobei der Muskulaturwert noch unter dem Leberwert liegt.

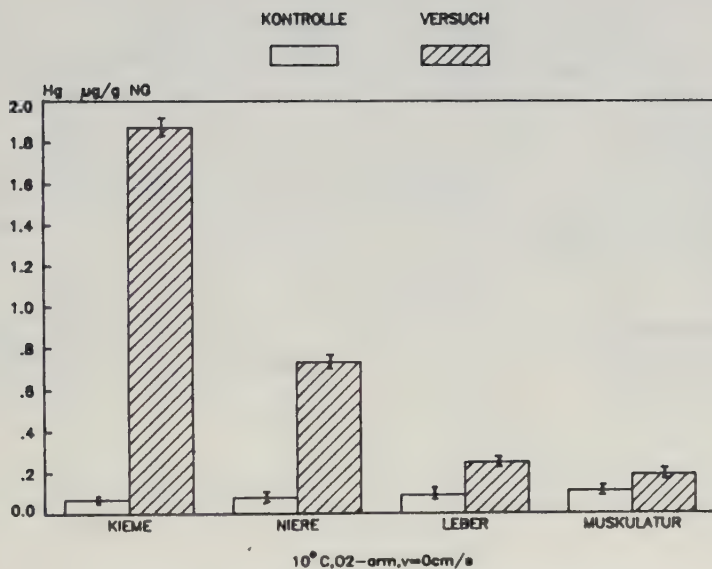


Abb. 19 Versuch 7 Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen nach 34-tägiger Hg-Exposition. NG = Naßgewicht.

Wie aus der Abbildung 19 ersichtlich, akkumulieren die Kiemen im Versuch 7 deutlich mehr Quecksilber als die restlichen Organe. An 2., 3. und 4. Stelle stehen Niere, Leber und Muskulatur.

Zwischen Leber und Niere liegt die Signifikanz auf dem 5% Niveau, ansonsten auf dem 1% Niveau.

Akkumulationsvermögen:

Kieme > Niere > Leber > Muskulatur

VERSUCH 8 10°C, O₂-arm, Strömung

Versuchsbedingungen:

PARAMETER	KONTROLLE (K)		VERSUCH (V)	
Hg ²⁺ -Konzentration im Wasser	-	µg Hg/l	0.5	µg Hg/l
Temperatur	(10 ± 0.5)	°C	(10 ± 0.5)	°C
Sauerstoffkonzentration	4.5 ± 0.02	mg O ₂ /l	4.5 ± 0.02	mg O ₂ /l
Strömungsgeschwindigkeit	10	cm/sec	10	cm/sec

Durchschnittliche Hg-Konzentrationen (µg Hg/g Naßgewicht)

Zeit/ Tage	N	Kiemen		Niere		Leber		Muskulatur	
		K	V	K	V	K	V	K	V
4	2	0.05	0.31	0.06	0.22	0.07	0.12	0.08	0.14
7	2	0.06	0.80	0.05	0.42	0.07	0.14	0.07	0.14
12	2	0.06	1.76	0.07	0.57	0.08	0.22	0.09	0.24
17	2	0.04	1.89	0.05	0.89	0.07	0.30	0.10	0.25
21	2	0.05	2.65	0.08	1.42	0.09	0.37	0.12	0.20
27	2	0.08	2.23	0.10	1.45	0.06	0.48	0.09	0.35
34	13	0.07	4.42	0.05	1.91	0.07	0.57	0.11	0.27
s ₃₄		0.04	0.68	0.05	0.24	8.03	0.07	0.04	0.07

Tab. (12) Quecksilberanreicherung verschiedener Organe nach unterschiedlicher Expositionsdauer.

N= Anzahl der Fische, K= Kontrolle, V= Versuch,

s₃₄= Standardabweichung am Tag 34

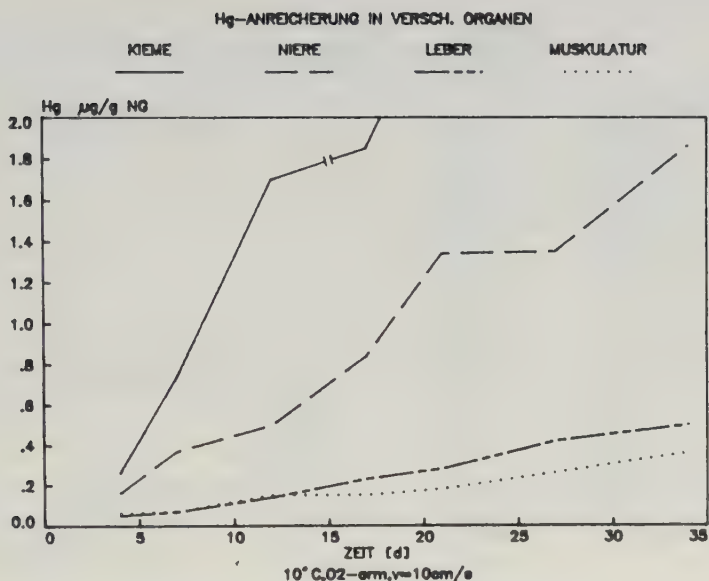


Abb. 20 Versuch 8 Zeitlicher Verlauf der Hg-Anreicherung in den untersuchten Organen beim Karpfen. NG = Naßgewicht.

Die Quecksilberkonzentration in den Kiemen steigt während der ersten 12 Versuchstage sehr stark an, zwischen dem 12. und dem 17. Tag ist die Zunahme geringfügig. Vom 17. Tag an, bis zum Versuchsende ist wieder eine sehr starke Zunahme der Hg-Konzentration zu verzeichnen. Am 34. Tag erreicht der Kiemenwert 4,35 µgHg/g NG !

Innerhalb der ersten 3 Versuchswochen steigt der Nierenwert stetig an. In der Zeit vom 21. bis 27. Tag ist praktisch keine Zunahme zu erkennen danach nimmt der Hg-gehalt bis zum Versuchsende gleichförmig zu und erreicht am 34. Tag etwa 40% des Kiemenwertes.

Über den Gesamtversuchszeitraum steigt der Leberwert kontinuierlich an, auf ca. 10% des Kiemenwertes am 34. Tag.

Bis zum 12. Tag sind die Muskulaturwerte identisch mit den Leberten. Von diesem Zeitpunkt an bleiben sie bis zum 17. Tag konstant und steigen dann gleichmäßig an. Am 34. Tag erreichen die Muskulaturwerte 8% der Kiemenwerte.

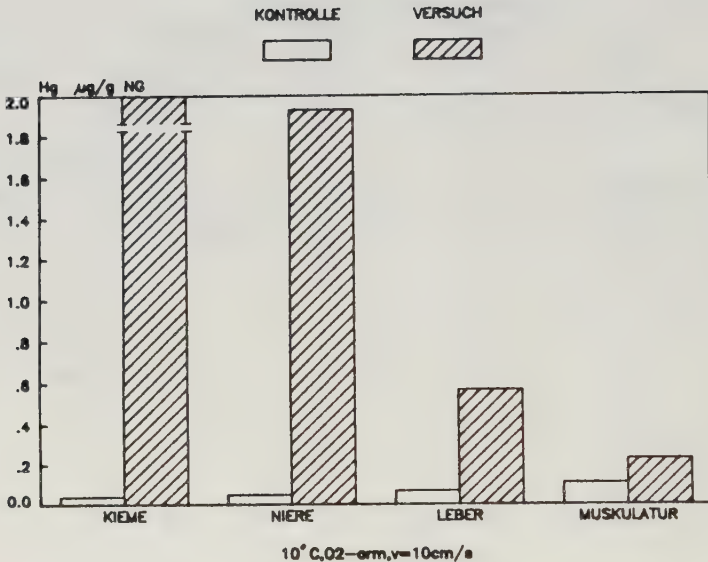


Abb. 21 Versuch 8 Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen nach 34-Tägiger Hg-Exposition. NG = Naßgewicht.

Aus der Säulengraphik ist zu entnehmen, daß in den Kiemen vom Versuch 8 eine deutlich höhere Hg-Konzentration vorliegt als in den restlichen Organen.

Dem Kiemenwert folgen: Nierenwert, Leberwert und Muskulaturwert. Die Signifikanz liegt durchaus auf dem 1% Niveau.

Akkumulationsvermögen:

Kieme >> Niere > Leber > Muskulatur

3.2.2 Vergleich der Ergebnisse der Hauptversuche

3.2.2.1 Plateauwert

Wie auch in den Voruntersuchungen (71 Tage Hg-Exposition), deutet auch in den Hauptversuchen (34 Tage Hg-Exposition), nichts darauf hin, daß der Plateauwert (Hg-Sättigung) in den Organen erreicht wurde.

3.2.2.2 Rangordnung der Organe

Die "Rangordnung" der Organe bezüglich ihrer Quecksilberkonzentration ist im Anfangsstadium der Versuche (außer im Versuch 1) stets gleich. Die Kiemen reichern am stärksten das Quecksilber an, gefolgt von Niere, Leber und Muskulatur.

Kieme > Niere > Leber > Muskulatur

Nach 34-tägiger Einwirkung des Schadstoffes ist die Niere in zwei Fällen (Versuch 1 und Versuch 6) höher belastet als die Kiemen und dies stets, wenn die Fische bei 20°C Wassertemperatur dem Quecksilber ausgesetzt sind (vgl. Kap. 3.1, Versuch 2 und 5).

Die Leber liegt in der "Rangordnung" stets nach der Kieme und Niere.

Kieme
Leber <
Niere

Die Unterschiede im Anreicherungsverhalten von Kieme und Niere (Kieme > Niere) treten am stärksten in den Kaltversuchen (10°C Wassertemperatur) zutage.

3.2.2.3 Ausmaß der Hg-Kontamination in Abhängigkeit von den Wasserparametern

3.2.2.3.1 Sauerstoff

Unter Sauerstoffreichen Versuchsbedingungen erreichen die Quecksilberkonzentrationen in den einzelnen Organen geringere Werte als bei sauerstoffarmen Bedingungen (Ausnahme: Niere im Versuch 1).

3.2.2.3.2 Strömung

Eine vorhandene Strömung ($v=10$ cm/sec.) wirkt sich durchwegs beschleunigend auf den Hg-Anreicherungsprozeß in den Karpfenorganen aus.

3.2.2.3.3 Temperatur

Hohe Wassertemperatur (20°C) scheint die Quecksilberanreicherung in Niere und Leber zu fördern, nicht dagegen in den Kiemen. Niedrige Wassertemperatur (10°C) begünstigt die Quecksilberkontamination der Kiemen.

3.3 VERGLEICHENDE ANALYSE DER VERSUCHE

3.3.1 Qualitative Aussagen aufgrund der Mittelwerte

Die Abbildungen zeigen jeweils für ein Organ die Höhe der Quecksilberanreicherung am Versuchsende (34. Tag) für die einzelnen Parameterkombinationen (S.62, Abb. 22).

Die Sauerstoffkonzentration ist auf der X-Achse, die Strömung auf der Y-Achse aufgetragen. Auf der Z-Achse ist die logarithmierte ($\log_{10}$) mittlere Hg-Konzentration von 13 Fischen am letzten Versuchstag aufgetragen (vgl. Abschn. 3.4).

Diese Art der (idealisierten) Darstellung wurde gewählt, da mit ihr die Ergebnisse der Hauptversuche anschaulich dargestellt werden können. Die 10°C-Versuche sind jeweils durch die Ebene 3,4,8,7, die 20°C-Versuche durch die Ebene 1,2,6,5 beschrieben.

3.3.1.1 Kieme

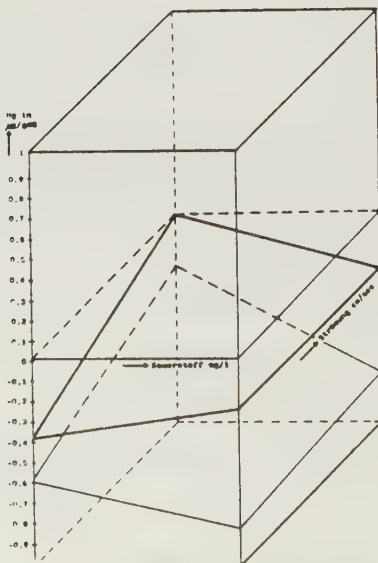
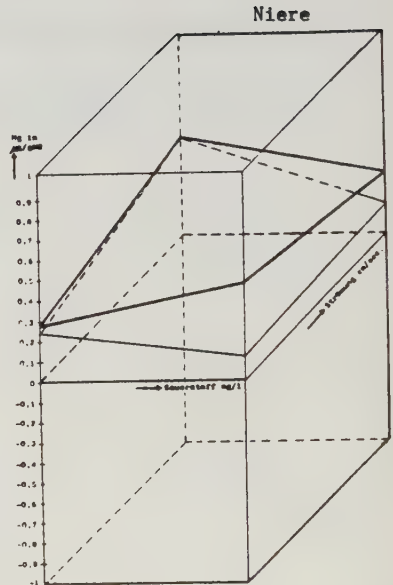
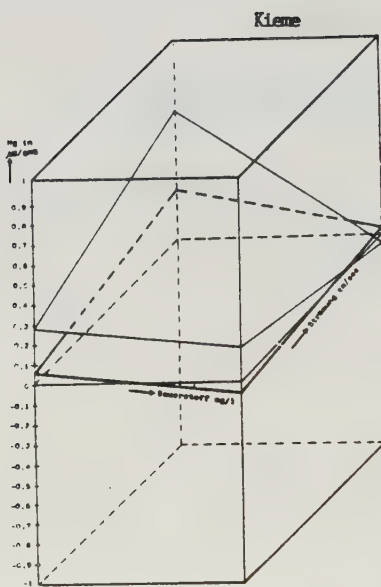
Für die Kieme gilt generell: Je niedriger der Sauerstoffgehalt, desto stärker die Quecksilberanreicherung. Je niedriger die Temperatur, desto stärker die Quecksilberanreicherung (Ausnahme Versuch 4).

Die Strömung wirkt sich im allgemeinen akkumulationsfördernd aus, jedoch mit einer Ausnahme: bei 10°C Wassertemperatur und Sauerstoffsättigung bewirkt die Strömung eine Reduktion der Quecksilberaufnahme.

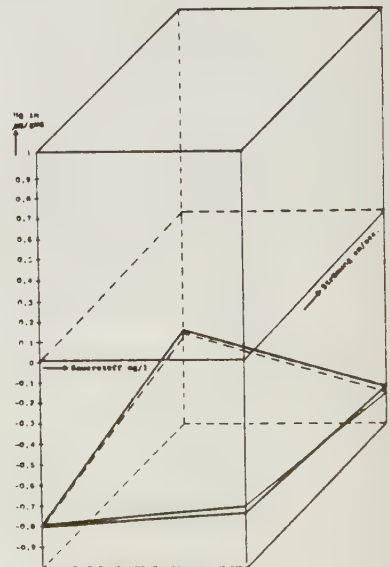
Die Parameterkombination " O₂-arm / +Ström. " bewirkt bei beiden Temperaturbereichen die stärkste Quecksilberanreicherung.

Die geringste Hg-Akkumulation: " 20°C, O₂-Sättigung, keine Ström. "

Die höchste Hg-Akkumulation: " 10°C, O₂-arm , Strömung "



Leber



Muskulatur

Abb. 22 Dreidimensionale Darstellungen (idealisiert) der logarithmierten Gruppenmittelwerte für die Organe Kieme, Niere, Leber und Muskulatur.

3.3.1.2 Niere

Die Niere reichert bei höherer Temperatur mehr Quecksilber an (Ausnahme Versuch 3) als bei niedriger Temperatur. Mit Ausnahme von Versuch 1 akkumuliert sie bei O₂-Armut mehr Quecksilber.

Während die Strömung allein das Akkumulationsgeschehen bei diesem Organ nicht deutlich beeinflusst, wirkt die Kombination von niedrigem Sauerstoffgehalt und hoher Strömung (-O₂/+Ström.) in beiden Temperaturbereichen akkumulationsfördernd.

Die geringste Hg-Akkumulation: " 10° C, O₂-Sättigung, keine Strömung "

Die höchste Hg-Akkumulation: " 20° C, O₂-Armut , Strömung "

3.3.1.3 Leber

Die Leber akkumuliert bei höherer Temperatur deutlich mehr Quecksilber an als bei niedriger Temperatur. Geringer Sauerstoffgehalt mit Ausnahme von Versuch 1 erhöht die Quecksilberanreicherung.

Die Strömung fördert allgemein die Quecksilberaufnahme in der Leber. Die Kombination von wenig Sauerstoff und Strömung (-O₂/+Ström.) bewirkt in beiden Temperaturbereichen höchste Quecksilberanreicherung in der Leber.

Die geringste Hg-Akkumulation: " 10° C, O₂-Sättigung, keine Strömung "

Die höchste Hg-Akkumulation: " 20° C, O₂-Armut , Strömung "

3.3.1.4 Muskulatur

Bei der Muskulatur ist die Wirkung der Temperatur auf die Hg-Anreicherung irrelevant. Der Parameter Sauerstoff läßt keine eindeutige Aussage über das Quecksilberanreicherungsverhalten zu.

Auch der Faktor Strömung allein zeigt keine eindeutige Auswirkung auf das Hg-Akkumulationsgeschehen. Die Kombination Sauerstoffarmut und Strömung ($-O_2/+Ström.$) verursacht in beiden Temperaturbereichen den höchsten Quecksilbergehalt.

Die geringste Hg-Akkumulation: " $10^{\circ}C$, O_2 -Sättigung, Strömung "

Die höchste Hg-Akkumulation: " $20^{\circ}C$, O_2 -Armut , Strömung "

Vergleichend läßt sich folgendes generell feststellen:

Nach 34 tägiger Auswirkung des Quecksilbers zeigt die Kieme die stärkste Schadstoffbelastung, ihr folgen die Organe Niere, Leber und Muskulatur.

Bei Betrachtung der Wirkung einzelner Parameter auf das Quecksilberakkumulationsgeschehen in allen Versuchen kristallisiert sich folgende Hierarchie heraus:

1. Sauerstoff beeinflusst das Akkumulationsgeschehen am stärksten, wobei in den Versuchen " O_2 -Armut (= $-O_2$) " die Quecksilberanreicherung in 12 Fällen deutlich gefördert wird. In 4 Fällen ist nur eine geringe Sauerstoffabhängigkeit der Quecksilberakkumulation zu beobachten.
2. Strömung ($+Ström.$) bewirkt in 11 Fällen stärkere Quecksilberanreicherung, in den restlichen 5 Versuchen ist die Wirkung der Strömung nicht sehr deutlich bzw. wirkt eher hemmend,
3. Die Temperatur spielt je nach Wirkungsrichtung oder Ausprägung ($= 10^{\circ}C$ oder $20^{\circ}C$) eine unterschiedliche Rolle. In den $20^{\circ}C$ -Versuchen reichern die Organe Niere und Leber deutlich mehr Quecksilber an als in den $10^{\circ}C$ -Versuchen. Bei der Kieme wirkt die $10^{\circ}C$ Wassertemperatur akkumulationsfördernd. Die Temperatur beeinflusst das Anreicherungsverhalten der Muskulatur nur geringfügig.

In allen Versuchen findet die höchste Quecksilberanreicherung bei der Parameterkombination: " O₂-arm/+Ström. " statt. Die Wirkungsrichtung ist stets in der Kombination die gleiche wie für die einzelnen Parameter (-O₂, +Ström.).

3.4 VARIANZANALYSE

Die Fischentnahme während des Versuches hatte das Ziel, Akkumulationstrends aufzuzeigen. Wegen des geringen Datenmaterials (jeweils 2 Fische) waren keine statistischen Vergleiche möglich. Nur die Hg-Konzentrationswerte vom Versuchsende (34.Tag) konnten einer genauen statistischen Analyse unterzogen werden.

Zuerst wurde eine Prüfung der Hg-Konzentrationswerte der Organe vom Versuchsende auf Normalverteilung durchgeführt (Kolmogorow-Smirnow-Test). Es ergab sich, daß bis auf Leber die Rohwerte nicht normalverteilt sind, weshalb sie mittels 10'er-Logarithmus transformiert wurden (vgl. Sachs 1974, S.86-87). Eine nochmalige Analyse mit den logarithmierten Daten zeigte für alle Variablen eine Übereinstimmung mit der Normalverteilung.

Im nächsten Schritt wurde eine 3-faktorielle Varianzanalyse (ANOVA) mit den Faktoren Sauerstoff (O_2), Temperatur (Temp.) und Strömung (Ström.) durchgeführt. Der Test liefert Informationen über das Ausmaß des vorhandenen Einflusses der genannten Parameter auf eine Quecksilberanreicherung in den Karpfenorganen, die Frage lautet, welche Wirkungen die einzelnen Wasserparameter (O_2 , Temp., Ström.) jeweils allein und in Kombination bei einer Quecksilberakkumulation in den untersuchten Karpfenorganen verursachen.

3.4.1 Kieme

Tabelle 13 weist die Ergebnisse der 3-faktoriellen Varianzanalyse (ANOVA) für das Organ Kieme im Computerausdruck aus.

***** ANALYSIS OF VARIANCE *****						
KIEME HG-KONZ. IN DER KIEME (LOG)						
BY OZ SAUERSTOFF						
TEMP TEMPERATUR						
STROEM STROENUNG						

SOURCE OF VARIATION	SUM OF SQUARES	B (%)	DF	MEAN SQUARE	F	SIGNIF OF F
MAIN EFFECTS	3.338	64,0	3	1.113	234.363	.001
OZ	1.925	37,0	1	1.925	405.529	.001
TEMP	.992	18,0	1	.992	209.060	.001
STROEM	.410	8,0	1	.410	86.371	.001
2-WAY INTERACTIONS	1.113	21,0	3	.371	78.166	.001
OZ TEMP	.343	6,0	1	.343	72.318	.001
OZ STROEM	.789	15,0	1	.789	166.239	.001
TEMP STROEM	.017	0,0	1	.017	3.547	.063
3-WAY INTERACTIONS	.338	7,0	1	.338	71.166	.001
OZ TEMP STROEM	.338		1	.338	71.166	.001
EXPLAINED	4.789	92,0	7	.684	144.107	.001
RESIDUAL	.441	8,0	93	.005		
TOTAL	5.230		100	.052		

In dieser Tabelle sind in den Spalten die Summe der Abweichungsquadrate vom Gesamtmittelwert (Sum of squares), das Bestimmtheitsmaß (B), die Freiheitsgrade (DF), mittlere quadratische Abweichung (mean square), die empirischen F-Werte (F) und das errechnete Signifikanzniveau (signif. of F).

In den Zeilen wird nach den Wirkungsursachen differenziert. Zunächst werden die isolierten Wirkungen der Haupteffekte (main effects) untersucht, anschließend die Wechselwirkungen (2-way und 3-way Interactions).

Die insgesamt erklärten Abweichungen, bei denen es sich um die Summe der isolierten Wirkungen und Wechselwirkungen (WW) handelt, werden in der folgenden Zeile (explained) aufgeführt. Diese werden in der nächsten Zeile den unerklärten Wirkungen (residual) gegenüber gestellt. Anschließend erfolgt in der letzten Zeile noch einmal die Gesamtvarianz (total).

Im Fall Kieme ergeben sich sowohl bei den Haupteffekten, wie auch bei den Wechselwirkungen Signifikanzen auf dem 1%-Niveau (Ausnahme: die zweifache -WW: Temp./Ström.).

Das Ergebnis der Varianzanalyse ergibt: 92% der erklärten Abweichungen (explained) werden durch die Summe der isolierten Wirkungen (Haupteffekte: Temperatur, Sauerstoff und Strömung) und Wechselwirkungen (Interaktionen) beeinflusst. 8,4% (residual) andere, unbekannte Faktoren beeinflussen die Quecksilberanreicherung in der Kieme, die in dieser Untersuchung nicht korreliert werden können.

Durch die weitere Analyse der SAQ-Werte kann folgendes ausgesagt werden: 64% der Variation der Hg-Anreicherungswerte werden durch die drei Wasserparameter (Haupteffekte = HE) erklärt. In der Wirkungsfolge steht der Parameter Sauerstoff mit 37% an erster Stelle, d.h. ihm sind über 1/3 der Effekte zuzuschreiben. An zweiter Stelle kommt die Temperatur mit 19%, mit wesentlich geringerem Anteil nämlich mit nur 8% ist der Faktor Strömung am Akkumulationsgeschehen beteiligt.

Zusätzliche Informationen liefern die 2-fachen- und 3-fachen-Interaktionen. 21% der Variation der Quecksilberwerte werden durch die 2-fachen-Interaktionen erklärt, wobei mit 15% die Kombination " O_2 /Ström." am stärksten die Quecksilberaufnahme in der Kieme beeinflusst. Die Kombination " O_2 /Temp." spielt mit 6% die zweitwichtigste Rolle, wogegen die 2-fache-Interaktion "Temp./Ström." praktisch keine Bedeutung hat (0%). Nur 7% der Variation der Quecksilberanreicherungswerte werden durch die 3-fachen-Interaktionen erklärt.

In der Varianzanalyse wird die Wirkung der Parameter Sauerstoff, Temperatur, Strömung und Wechselwirkungen zwischen diesen unabhängigen Variablen auf die Quecksilberanreicherung in den Organen der Karpfen generell gezeigt, nicht jedoch nach der Wirkungsrichtung (Ausprägungen) der Faktoren.

Im folgenden wird mit Hilfe der Multiple Classification Analysis (MCA) versucht die Wirkungsrichtung der unabhängigen Variablen auf die abhängige Variable zu beurteilen.

Tab. 14 MCA-Werte für die Kieme

* * M U L T I P L E C L A S S I F I C A T I O N A N A L Y S I S * *			
BY	KIEME	HG-KONZ. IN DER KIEME (LOG)	
	O2	SAUERSTOFF	
	TEMP	TEMPERATUR	
	STROEM	STROEHUNG	

GRAND MEAN = .17			
VARIABLE + CATEGORY	N	UNADJUSTED DEV^N	ETA
O2			
1 SAUERSTOFFARM	52	.14	
2 SAUERSTOFFREICH	49	-.14	.61
TEMP			
1 10 GRAD CELSIUS	50	.10	
2 20 GRAD CELSIUS	51	-.10	.43
STROEM			
1 0 CM PRO S	51	-.06	
2 10 CM PRO S	50	.06	.27
MULTIPLE R SQUARED			
MULTIPLE R			

Die MCA-Tabelle für die Kieme zeigt, daß beim Faktor Sauerstoff die größte Abweichung der Gruppenmittelwerte vom Gesamtmittelwert (grand mean) vorliegt. Temperatur hat die zweitgrößte Abweichung,

dann kommt der Faktor Strömung. Die DEV'-N-Werte (die größte Abweichung der Gruppenmittelwerte vom Gesamtmittelwert) verdeutlichen zusätzlich die Wirkungsunterschiede der Ausprägungen der Haupteffekte (Tab.14). Demnach reicht die Kieme unter Bedingungen:

Sauerstoffarm ($-O_2$)

10°C Wassertemperatur (-Temp.)

Strömung = 10 cm/sec. (+Ström.)

am meisten Quecksilber an.

Aus den Ergebnissen der MCA und der SAQ-Werte der ANOVA können folgende definierte Aussagen gewonnen werden:

Es zeichnet sich eine Hierarchie in der Wirkung der einzelnen Wasserparameter und deren Kombinationen ab:

" $-O_2$, -Temp., $-O_2$ /+Ström., +Ström."

Dies bedeutet, daß der Haupteffekt Sauerstoff (Anteil: 39%) in der Ausprägung "Sauerstoffarm" die Quecksilberanreicherung am stärksten begünstigt, gefolgt vom Haupteffekt Temperatur (Ausprägung 10°C, Anteil: 19%) und der Kombination " $-O_2$ /+Ström." (Anteil: 15%). Der Einfluß des Haupteffektes Strömung und die weiteren Wechselwirkungen erklären so wenig Varianz (8%, 6%, 0%, 7%), daß sie für eine weitere Interpretation irrelevant erscheinen.

3.4.2 Niere

Tabelle 15 weist die Ergebnisse der 3-faktoriellen Varianzanalyse (ANOVA) für das Organ Niere im Computerdruck aus.

***** ANALYSIS OF VARIANCE *****					
0 NIERE HG-KONZ. IM GER NIERE [LOG]					
BY 02 SAUERSTOFF					
TEMP TEMPERATUR					
STROEM STROEHUNG					

SOURCE OF VARIATION	SUM OF SQUARES	D (%) OF	MEAN SQUARE	F	SIGNIF OF F
MAIN EFFECTS	.854	51,5 3	.285	281.465	.001
02	.282	18,4 1	.282	278.489	.001
TEMP	.400	25,3 1	.400	395.168	.001
STROEM	.159	7,1 1	.159	157.722	.001
2-WAY INTERACTIONS	.933	41,2 3	.311	307.738	.001
02 TEMP	.346	22,0 1	.346	342.146	.001
02 STROEM	.530	16,7 1	.530	523.835	.001
TEMP STROEM	.076	3,4 1	.076	75.163	.001
3-WAY INTERACTIONS	.046	1,9 1	.046	45.871	.001
02 TEMP STROEM	.046	1	.046	45.871	.001
EXPLAINED	1.834	94,6 7	.262	259.069	.001
RESIDUAL	.094	5,4 93	.001		
TOTAL	1.928	100	.019		

Bei der Niere ergeben sich sowohl bei den Haupteffekten (HE) als auch bei den Wechselwirkungen Signifikanzen auf dem 1%-Niveau. Das Ergebnis der ANOVA bedeutet, daß 94,6% der erklärten Abweichungen durch die Summe der isolierten Wirkungen und Wechselwirkungen beeinflusst werden, wobei die Haupteffekte 51,5%, die 2-fachen Wechselwirkungen 41,2% und die 3-fache Kombination nur 1,9% der Variation der Quecksilberanreicherung bewirken.

Die stärkste Wirkung übt mit 25,3% der Faktor Temperatur aus, ihr folgen mit 22,0% die Parameterkombination " O₂/Temperatur ", mit 18,4% der Faktor Sauerstoff und mit 16,7% die Kombinaton "O₂/Ström.".

Tabelle 16 zeigt die MCA-Werte für die Niere

* * M U L T I P L E C L A S S I F I C A T I O N A N A L Y S I S * *				
BY		HIERE HG-KONZ. IN DER NIERE [LOG]		
O2		SAUERSTOFF		
TEMP		TEMPERATUR		
STROEM		STROEHUNG		
* * * * *				
GRAND MEAN =		-31		
VARIABLE + CATEGORY		N	UNADJUSTED DEV'N	ETA
O2				
1 SAUERSTOFFARM		52	.05	
2 SAUERSTOFFREICH		49	-.05	
				.38
TEMP				
1 10 GRAD CELSIUS		50	-.06	
2 20 GRAD CELSIUS		51	.06	
				.46
STROEM				
1 0 CM PRO S		51	-.04	
2 10 CM PRO S		50	.04	
				.31
MULTIPLE R SQUARED				
MULTIPLE R				

Die DEV'N-Werte verdeutlichen, daß die Niere unter Bedingungen:

Sauerstoffarm (-O₂)
 20°C Wassertemperatur (+Temp.)
 Strömung = 10 cm/sec. (+Ström.)

am stärksten Quecksilber akkumuliert. Hier folgt im Gegensatz zur Kieme ein Umkehr des Vorzeichens des Parameters Temperatur. Die Ausprägung " -Temp. " verursacht bei der Kieme stärkere Hg-Belastung.

Betrachtet man die Ergebnisse der MCA und der ANOVA zusammen so ergibt sich folgendes:

Im Gegensatz zur Kieme hat die Temperatur, vorallem die Ausprägung "+Temp.", hier den größten Einfluß auf die Quecksilberakkumulation, an zweiter Stelle kommt die 2-fache Wechselwirkung " $-O_2$ /+Temp.", gefolgt von " $-O_2$ " und zuletzt die Kombination " $-O_2$ /+Ström.". Die Ausprägung sauerstoffarm ($-O_2$) spielt hier die zweitwichtigste Rolle, sie ist nämlich auch bei den Wechselwirkungen mit dem gleichen Vorzeichen ($-O_2$) präsent.

Für das Organ Niere zeichnet sich in der Wirkung der einzelnen Wasserparameter und deren Kombinationen folgende Hierarchie ab:

" +Temp., $-O_2$ /+Temp., $-O_2$, $-O_2$ /+Ström. "

3.4.3 Leber

Tabelle 17 weist die Ergebnisse der 3-faktoriellen Varianzanalyse (ANOVA) für das Organ Leber im Computerausdruck aus.

***** ANALYSIS OF VARIANCE *****						
L		HG-KONZ. IN DER LEBER [ROHWEIT]				
BY OZ		SAUERSTOFF				
TEMP		TEMPERATUR				
STROEM		STROMUNG				

SOURCE OF VARIATION	SUM OF SQUARES	B (%)	DF	MEAN SQUARE	F	SIGNIF OF F
MAIN EFFECTS	4.863	74,4	3	1.621	316.402	.001
OZ	.947	13,9	1	.947	184.812	.001
TEMP	2.610	38,3	1	2.610	509.340	.001
STROEM	1.206	17,7	1	1.206	235.410	.001
2-WAY INTERACTIONS	1.343	19,7	3	.448	87.408	.001
OZ TEMP	.067	0,9	1	.067	12.996	.001
OZ STROEM	1.247	18,3	1	1.247	243.402	.001
TEMP STROEM	.054	8,0	1	.054	10.506	.002
3-WAY INTERACTIONS	.131	1,9	1	.131	25.641	.001
OZ TEMP STROEM	.131		1	.131	25.641	.001
EXPLAINED	6.338	93,07		.905	176.724	.001
RESIDUAL	.476	7,0	93	.005		
TOTAL	6.814	100		.068		

Wie aus der Tabelle 17 zu entnehmen ist, ergeben sich für die Leber sowohl bei den Haupteffekten als auch bei den Wechselwirkungen Signifikanzen auf 1%-Niveau.

Durch die Summe der isolierten Wirkungen und Wechselwirkungen werden 93% der Abweichungen erklärt. 74,4% der Variation der Quecksilberwerte werden durch die Haupteffekte, 19,7% der Variation der Quecksilberwerte durch die 2-fachen Wechselwirkungen und nur 1,9% der Variation durch die 3-fachen Wechselwirkungen erklärt.

Der Faktor Temperatur beeinflusst die Quecksilberakkumulation in der Leber mit 38,3% am stärksten, ihm folgt die 2-fach Wechselwirkung "O₂/Ström." mit 18,3%, die Strömung mit 17,7% und Sauerstoff mit 13,9%.

Die übrigen Parameterkombinationen bewirken so wenig Varianz (vgl. Tab. 17), daß sie für eine weitere Betrachtung irrelevant erscheinen.

Tabelle 18 zeigt die MCA-Werte für die Leber.

* * MULTIPLE CLASSIFICATION ANALYSIS * *				
BY		L Hg-KONZ. IN DER LEBER (PROHWERT)		
O2		SAUERSTOFF		
TEMP		TEMPERATUR		
STROEM		STROMUNG		

GRAND MEAN =		.46		
VARIABLE + CATEGORY		N	UNADJUSTED DEV'N	ETA
O2				
	1 SAUERSTOFFARM	52	.09	
	2 SAUERSTOFFREICH	49	-.10	
				.37
TEMP				
	1 10 GRAD CELSIUS	50	-.16	
	2 20 GRAD CELSIUS	51	.16	
				.63
STROEM				
	1 0 CM PRO S	51	-.11	
	2 10 CM PRO S	50	.12	
				.44
MULTIPLE R SQUARED				
MULTIPLE R				

Die errechneten DEV'N-Werte differenzieren die gewonnene Aussage von ANOVA. Wie bei der Niere begünstigt hohe Temperatur die Hg-Anreicherung in diesem Organ am stärksten. Auch die anderen Parameter verhalten sich ähnlich wie bei der Niere nur hier findet eine Verschiebung in der Hierarchie statt. Der 2-fachen Wechsel-

wirkung "-O₂/+Ström." kommt die zweitwichtigste Bedeutung zu. In der Wirkung der einzelnen Wasserparameter und deren Kombinationen zeichnet sich folgende Hierarchie ab:

" +Temp., -O₂/+Ström., +Ström., -O₂ "

3.4.4 Muskulatur

Tabelle 19 weist die Ergebnisse der 3-faktoriellen Varianzanalyse (ANOVA) für die Muskulatur im Computerausdruck aus.

***** ANALYSIS OF VARIANCE *****						
		HG-KONZ. MUSKULATUR [LOG]				
BY O2		SAUERSTOFF				
TEMP		TEMPERATUR				
STROEM		STROEMUNG				

SOURCE OF VARIATION		SUM OF B SQUARES (%) DF		MEAN SQUARE	F	SIGNIF OF F
MAIN EFFECTS		.323	13,8 3	.108	9.134	.001
O2		.225	9,6 1	.225	19.127	.001
TEMP		.004	0,2 1	.004	.309	.580
STROEM		.091	3,9 1	.091	7.748	.007
2-WAY INTERACTIONS		.918	39,2 3	.306	25.950	.001
O2 TEMP		.000	0,0 1	.000	.015	.901
O2 STROEM		.909	38,8 1	.909	77.153	.001
TEMP STROEM		.008	0,3 1	.008	.682	.411
3-WAY INTERACTIONS		.003	0,0 1	.003	.286	.594
O2 TEMP STROEM		.003	0,0 1	.003	.286	.594
EXPLAINED		1.244	53,2 7	.178	15.077	.001
RESIDUAL		1.096	46,8 93	.012		
TOTAL		2.340	100	.023		

Wie aus der Tabelle 19 ersichtlich, ergeben sich für die Muskulatur sowohl bei den Haupteffekten (Ausnahme: Temperatur) wie auch bei den Wechselwirkungen (Ausnahmen: O₂/Temp., Temp./Ström., und die 3-fache Wechselwirkung) Signifikanzen auf dem 1%-Niveau.

Nur 53,3% der erklärten Abweichungen können durch die Summe der isolierten Wirkungen und Wechselwirkungen erklärt werden. 46,8% ! andere, unbekannte Faktoren beeinflussen die Quecksilberakkumulation in der Muskulatur der Karpfen.

Während nur 14% der Variation der Quecksilberwerte durch die Haupteffekte erklärt werden können, sind für 39% der Variationen der Quecksilberwerte die 2-fachen Wechselwirkungen verantwortlich so z.B. die Kombination "O₂/Ström." allein 38%.

Tabelle 20 zeigt die MCA-Werte für die Muskulatur

*** MULTIPLE CLASSIFICATION ANALYSIS ***

Muskulatur Hg-Konz. in der Muskulatur (log)

BY O₂ SAUERSTOFF
TEMP TEMPERATUR
STROM STROMUNG

GRAND MEAN =		-.73	
VARIABLE + CATEGORY	N	UNADJUSTED DEV"U ETA	
O ₂			
1 SAUERSTOFFARM	32	.05	
2 SAUERSTOFFREICH	49	-.05	
			.31
TEMP			
1 10 GRAD CELSIUS	30	.01	
2 20 GRAD CELSIUS	31	-.01	
			.04
STROM			
1 0 CM PRO S	31	-.03	
2 10 CM PRO S	30	.03	
			.20
MULTIPLE R SQUARED			
MULTIPLE R			

Die errechneten DEV'N-Werte verdeutlichen die Wirkungsunterschiede der Parameterausprägungen der unabhängigen Variablen. Demnach reicht die Muskulatur unter Bedingungen:

Sauerstoffarm ($-O_2$)
Strömung = 10 cm/sec. (+Ström.)
10°C Wassertemperatur (-Temp.)

am meisten Quecksilber an.

Auch die MCA bestätigt, daß im Fall der Muskulatur dem Parameter Temperatur keine bedeutende Wirkung (praktisch 0%) auf das Quecksilberakkumulationsgeschehen zeigt (vgl. auch 3.2.1.4).

Für die Wasserparameter bzw. deren Kombinationen läßt sich bezüglich der Quecksilberakkumulationsförderung folgende hierarchische Reihenfolge feststellen:

" $-O_2$ /+Ström., $-O_2$, +Ström. "

Hier zeigt die Interaktion der Parameterausprägungen " $-O_2$ /+Ström." die größte Wirkung auf das Quecksilberanreicherungs-geschehen.

3.4.5 Zusammenfassende Bemerkungen zu den quantitativen Analysen

. Die univariate, mehrfaktorielle Varianzanalyse (ANOVA) ergibt, daß die einzelnen Wasserparameter, Sauerstoff, Temperatur, Strömung, und deren Kombinationen die Quecksilberanreicherung in den untersuchten Karpfenorganen beeinflussen.

. Durch die MCA (Multiple Classification Analysis) werden die Wirkungsunterschiede der Ausprägungen der Wasserparameter (Haupteffekte) ermittelt.

Die Ergebnisse der ANOVA und MCA verdeutlichen, daß die Wirkung auf ein bestimmtes Organ für jeden Parameter und jede Parameterkombination unterschiedlich ist.

Für die vier untersuchten Karpfenorgane zeichnen sich demnach folgenden Hierarchien in der Wirkung der einzelnen Wasserparameter und deren Kombinationen aus:

KIEME " $-O_2$, -Temp., $-O_2/+Ström.$, +Ström. "

NIERE " +Temp., $-O_2/+Temp.$, $-O_2$, $-O_2/+Ström.$ "

LEBER " +Temp., $-O_2/+Ström.$, +Ström., $-O_2$ "

MUSKULATUR " $-O_2/+Ström.$, $-O_2$, +Ström. "

Aus dieser Aufstellung geht hervor:

Sauerstoffmangel fördert in allen Organen die Quecksilberakkumulation. Die Strömung begünstigt die Schadstoffakkumulation in allen Organen außer Niere.

Hohe Wassertemperatur fördert die Quecksilberanreicherung in Niere und Leber. In der Kieme dagegen ist die Quecksilberakkumulation

bei niedriger Temperatur höher. Der Faktor Temperatur stellt somit eine Besonderheit dar, da im Gegensatz zu Sauerstoff und Strömung das Anreicherungsverhalten durch unterschiedliche Ausprägung begünstigt wird (Umkehr des Vorzeichens).

Bei der interaktiven Wirkung der Parameter ist der Kombination " $-O_2/+Ström.$ " die größte Bedeutung beizumessen, da diese Kombination bei allen Organen zur höchsten Quecksilberanreicherung führt (vgl. jeweils Versuch 6 und 8 in Abb. 22).

Der Einfluß der Kombination " $-O_2/+Ström.$ " ist bei allen Organen stärker als die isolierte Wirkung der Parameterausprägung "+Ström.". Dies deutet darauf hin, daß die Interaktion der Parameter " $-O_2$ ", "+Ström." einen reinen Kombinationseffekt (Synergismus) darstellt.

4. Diskussion

4.1 Kritische Stellungnahme zu den Versuchen

Wegen der Reproduzierbarkeit und Vergleichbarkeit der Ergebnisse beschränkt sich die Arbeit auf definierte Versuchsbedingungen im Labor mit einer Fischart (*Cyprinus carpio* L.).

Da die Versuche unter Bedingungen ohne Sediment und Leitungswasser durchgeführt werden, kommen die mannigfaltigen Wechselbeziehungen eines natürlichen Ökosystems nicht zur Wirkung. Der Ansatz umfaßt jedoch Kombinationen von drei wichtigen Parametern, die im Freiland in Wechselbeziehung stehen und, zumindest prinzipiell, unabhängig voneinander variieren können.

In den Versuchen wurden im Freiland vorkommende Parameterbereiche benutzt, ihr Praxisbezug ist jedoch deutlich eingeschränkt, da sich unter natürlichen Bedingungen hinsichtlich Toxizität, Metabolismus und Fixierung des Schadstoffes völlig andere Mechanismen einstellen können. Bei Anwesenheit von Sediment z.B. ist dort die Fixierung und Weitergabe von Schadstoffen über die Nahrungskette größer (Silver 1984).

Zudem können durch pH-Verschiebungen diese Kontaminanten remobilisiert werden wodurch die Schadstoffkonzentration im Wasser erhöht werden kann (Akagi et al. 1979).

Bereiche der jeweiligen Wasserparameter

Aus Zeitgründen konnten die Akkumulationsversuche nur mit jeweils zwei Ausprägungen der Wasserparameter durchgeführt werden. Allein durch deren Kombination ergaben sich schon 8 Versuche. Wenn der intermediäre Bereich der Wasserparameter, so z.B. 15°C, 5 cm/sec.

und 6 mgO₂/l, mitberücksichtigt worden wäre, so hätten sich 27 Versuchskombinationen ergeben, was aus technischen und zeitlichen Gründen nicht vertretbar gewesen wäre.

Fischmaterial

Aus bereits erwähnten Gründen (vgl. Kap.2) konnten jeweils 25 Kl-Karpfen pro Versuch untersucht werden. Dadurch können zwar die Ergebnisse des 4. bis 27. Tages keine statistisch gesicherten Aussagen ermöglichen, zeigen jedoch die Tendenz des Hg-Akkumulationsverhaltens im Karpfen ziemlich deutlich.

Die Versuche wurden nur mit Karpfen durchgeführt. Diese euryöke Fischart kann für Cypriniden, Fische, die hauptsächlich in wärmeren, stehenden und langsamfließenden Gewässern vorkommen, als Referenzorganismus angesehen werden (Schäperclaus 1979). Die Verallgemeinerungsfähigkeit dieser Ergebnisse für andere Fische ist jedoch eingeschränkt. Deshalb sollten diese Versuche z.B. mit einem Vertreter der Salmoniden wiederholt werden: Salmoniden reagieren auf die chemisch-physikalischen Veränderungen ihrer Umgebung wesentlich empfindlicher als die Cypriniden (Schäperclaus 1979).

Versuchsdauer

Über das Akkumulationsgeschehen im Muskelfleisch der Karpfen (zum Teil auch Leber) konnten nicht so differenzierte Aussagen wie für die anderen Organe gewonnen werden. Die Versuchsdauer von 34 Tagen scheint hierfür zu kurz zu sein. Da aber bei den Vorversuchen ein positiver Zusammenhang zwischen den Quecksilberkonzentrationen der Untersuchten Organe festgestellt werden konnte, kann man davon ausgehen, daß die prinzipiellen Aussagen über Kieme, Niere und Leber im Prinzip auch auf die Muskulatur extrapoliert werden können. Auch

andere Autoren (Hannerz 1968, Suzuki et al. 1973, McKim 1981) haben diesen Zusammenhang zwischen den Organen bei den von ihnen untersuchten Fischarten bestätigt.

4.2 Interpretation der Versuchsergebnisse

Neben den noch weitgehend unbekannten physiologischen und chemischen Abläufen an und in den Zellen beeinflussen Außenparameter die Quecksilberaufnahme. Es soll versucht werden, an Hand der eigenen Ergebnisse Zusammenhänge zwischen beiden Komplexen zu erläutern. Die Funktionen und die daraus resultierenden Belastungen der jeweiligen Organe sollen dabei mitdiskutiert werden.

Im folgenden wird der Versuch unternommen, die gewonnenen Werte für die einzelnen Organe zu interpretieren.

Kiemen

Wie im Kapitel 3 dargelegt, erhöhen geringe O_2 -Konzentrationen ($-O_2$), niedrige Temperatur ($-Temp.$), die Parameterkombination O_2 -arm/Strömung ($-O_2/+Ström.$) und Strömung $v=-10$ cm/sec. ($+Ström.$) in absteigender Rangordnung die Hg-Anreicherung in den Karpfenkiemen (vgl. ANOVA und MCA-Tabellen für Kieme).

Dies bedeutet, daß der Parameter Sauerstoff in der Ausprägung " $-O_2$ " die Schadstoffakkumulation positiv beeinflusst, gefolgt von der Ausprägung " $-Temp.$ " und der Kombination " $-O_2/+Ström$ ". An vierter Stelle kommt die Strömung mit der Ausprägung " $+Ström.$ ".

Die Ursache der stärksten Hg-Belastung der Kiemen unter sauerstoffarmen Versuchsbedingungen liegt möglicherweise in einem intensiveren Kontakt zwischen respiratorischem Epithel und dem Außenwasser. Denn

unterschreitet der O_2 -Gehalt des Wassers eine Grenzkonzentration so setzt eine Hyperventilation ein. Sie dient der Erhöhung des O_2 -Gefälles zum Blut durch Verringerung der Ausnutzung des O_2 -Angebotes (Brown 1957, Gibbin et al. 1973).

Ob die organischen Hg-Verbindungen im Kiemenschleim demethyliert oder die anorganischen methyliert und dann erst von den Kiemen aufgenommen werden, ist noch weitgehend ungeklärt. Jernelöv und Lann (1971) zeigten, daß anorganische Hg-Verbindungen außerhalb des Fisches durch Mikroorganismen im Schleim methyliert, oder aber als Hg^{++} über die Kiemen aufgenommen werden können. Die große Streuung im Verhältnis der beiden Hg-Verbindungen in den Gewebekonzentrationen stützt wiederum die Vermutung, daß auch anorganisch gebundenes Quecksilber die Kiemenepithelien direkt, als Hg^{++} oder als Komplex, ohne vorhergehende Methylierung passiert.

Der Weitertransport erfolgt über das Blut. In vitro Versuche von Olson et al. (1973a) zeigten, daß Methylquecksilberchlorid eine hohe Affinität zu den Erythrozyten hat. Diese bestand auch für $HgCl_2$ aber in wesentlich geringerer Intensität.

Tautenhahn (1980) gibt als kritische Sauerstoffkonzentration für Karpfen unter normalen Haltungsbedingungen $4,2 \text{ mg } O_2/l$ an (47 - 49% O_2 -Sättigungsgrad). In den in dieser Arbeit unter sauerstoffarmen Bedingungen durchgeführten Versuchen herrschte zwar eine O_2 -Konzentration von $4,5 \pm 0,2 \text{ mg } O_2/l$, da dieser Wert nur geringfügig über dem Tautenhahn'schen Wert vom $4,2 \text{ mg } O_2/l$ liegt und da die Fische einer ständigen Hg-Belastung ausgesetzt sind, ist es wahrscheinlich, daß für die Tiere zumindest zeitweise eine Streßsituation besteht, die zur Hyperventilation führen kann.

Um den O_2 -Defizit auszugleichen, vergrößert der Fisch sein Respirationsvolumen (den Weg, den das Wasser beim Passieren der Kiemen nimmt) durch Erhöhung der Ventilationsfrequenz und der Amplitude der

Atembewegungen. Dies bewirkt, daß der Kontakt des Kiemenepithels zum Kontaminanten intensiviert wird (Kutty 1968, Fry 1971).

Der Karpfen ventiliert in Ruhe mit Atmungszyklen bis zu 5 Sekunden Dauer und nutzt bei dieser Ruheatmung nicht die ganze Kiemenfläche aus, was wiederum eine Erklärung für die geringeren Kiemenquecksilberwerte in den "+O₂/-Ström."-Versuchen sein kann.

Die erhöhte Ventilationsarbeit und die gesteigerte Kreislaufaktivität bei O₂-Mangel führt zur Stoffwechselsteigerung der Fische (Fry 1957, Kutty 1968). Mit einer O₂-Erniedrigung bzw. CO₂-Erhöhung im Blut geht eine Senkung des Blut-pH-Wertes einher. Dabei bleibt auch bei hohem Sauerstoffpartialdruck ein Teil des Hämoglobins unabgesättigt (Root-Effekt), was wiederum eine Steigerung der Erythrozytenzahl (Mott 1957, Fry 1957) und damit eine erhöhte Quecksilberbindung durch die Erythrozyten zur Folge hat (Olson et al. 1973a, Niimi und Lowe-Jinde 1984). Da der Weitertransport über das Blut erfolgt, kann diese Tatsache auch den Quecksilbergehalt der inneren Organe beeinflussen.

Der Temperatureffekt ist im Gegensatz zu den anderen Organen positiv (erhöhte Quecksilberanreicherung bei niedriger Temperatur, bis auf eine Ausnahme: Versuch 1).

Da die Kieme im Gegensatz zu den anderen untersuchten Organen ein ausgesprochenes Durchgangsorgan ist, könnte dieser Effekt auf eine unterschiedliche Bedeutung der Temperatur für Aufnahme und Abgabe hinweisen: Die relativ hohe Schadstoffkonzentration in den Kiemen der hier untersuchten Karpfen bei den 10°C-Versuchen kann durch die Annahme verstanden werden, daß, bedingt durch die geringere Stoffwechselrate der Blutdurchsatz an den Kiemen reduziert ist. Der Abtransport der Schadstoffe aus der Kieme würde dadurch reduziert werden (eine zusätzliche Wirkung zeigt hierbei O₂-Mangel).

Die geringere Hg-Anreicherung in den Kiemen bei den 20°C - Versuchen

könnte auf stärkere Durchblutung der Kiemen aufgrund des intensiveren Stoffwechselgeschehens der Fische zurückgeführt werden, denn dementsprechend schneller erfolgt der Weitertransport über das Blut in die inneren Organe (Olson 1973a). Die Präferenztemperatur der Karpfen liegt zwischen 27°C - 30°C (Eifac, Technical Paper 6, Schäperclaus 1979). Daher kann nicht vermutet werden, daß die Tiere bei 20°C stärker geschädigt werden und deshalb am Versuchsende geschwächt sind.

Die positive Wirkung (hohe Hg-Akkumulation) der Parameterkombination " O_2 /+Ström." trifft nicht nur für die Kieme zu, sondern, wenn auch in unterschiedlicher Rangordnung für alle Organe.

Der Grund dieses Kombinationseffektes kann in der folgenden Tatsache liegen: Im Freiland suchen die Fische bei O_2 -Mangel die ruhigeren Zonen eines Gewässers auf und kompensieren den O_2 -Defizit durch Erhöhung der Kiemenschlagfrequenz (Kutty 1968, Dalberg 1968). Dies bewirkt aber einen vermehrten Kontakt mit dem Schadstoff. Durch die Strömung wird der Zustrom des Hg's an den Kiemen noch mehr erhöht, wobei der Effekt auf das Hg-Akkumulationsgeschehen potenziert wird.

Bei einer kontinuierlich vorhandenen Strömung sind die Fische zur Daueraktivität gezwungen, wobei die Aktivstoffwechselrate und damit der O_2 -Bedarf des Organismus (Kutty 1968, Rao 1968) dementsprechend steigt. Für die eigenen Versuche könnte daraus gefolgert werden, daß auch der Hg-Weitertransport über das Blut intensiver verläuft.

Strömung wirkt sich im allgemeinen akkumulationsfördernd aus, jedoch mit einer Ausnahme: bei 10°C und O_2 -Sättigung bewirkt Strömung eine Reduktion der Hg-Aufnahme. Dies könnte mit einer durch die Strömung induzierten verstärkten Exkretion über die Kieme erklärt werden.

Zusammenfassend kann man feststellen, daß die Kiemen unter O_2 -Mangel die größte Quecksiberbelastung bei einer subtoxischen ($0,5 \text{ ugHg/l}$)

Hg-Exposition zeigen. Außer bei Versuch 4 reichern sie um so mehr Quecksilber an, je niedriger die Wassertemperatur ist.

Bei der Parameterkombination " $-O_2/+Strömung$ " liegt ein interaktiver Effekt vor, hierbei zeigt sich der Sauerstoffeffekt strömungsabhängig.

Die Strömung allein wirkt sich nur bedingt akkumulationsfördernd aus.

Die Parameterkombination " $-O_2/-Temp./+Ström.$ " stellt für den Karpfen scheinbar das ungünstigste Wasserverhältnis dar, da die Kieme unter diesen Bedingungen den höchsten Quecksilbergehalt aufweist.

Demnach könnte die Kieme als Indikatororgan für den aktuellen Hg-Belastungszustand eines Gewässers dienen.

Niere

Die Betrachtung der Ergebnisse (ANOVA + MCA) für die Niere liefert folgende Hierarchie in der Wirkung der einzelnen Wasserparameter bzw. deren Kombinationen auf die HgAkkumulation in diesem Organ:

$+Temp., -O_2/+Temp., -O_2, -O_2/+Ström.$

Die stärkste Wirkung wird vom Faktor Temperatur mit der Ausprägung $20^{\circ}C$ (+Temp.) ausgeübt. Ihr folgen die Parameter bzw. deren Kombinationen O_2 -arm/hohe Temperatur ($-O_2/+Temp$), Sauerstoffarm ($-O_2$) und die Kombination von Sauerstoffarm/hohe Strömung ($-O_2/+Ström.$).

Nach der Kiemenpassage wird Quecksilber über den Blutkreislauf zu den Organen transportiert. Sicher ist, daß bereits 10 Minuten nach einer Hg-Exposition ($13 \mu gHg/l$ aus CH_3HgCl und $54 \mu gHg/l$ aus $HgCl_2$)

das Fischblut einen Sättigungseffekt aufweist, d.h. die Hg-Aufnahmekapazität des Blutes ist nach kurzer Zeit erschöpft (Olson et al. 1973a).

Sehr häufig wird über die Rolle der Niere als Sammelort für Quecksilber berichtet und dieses Organ als "Indikatororgan" bei einer Hg-Kontamination angesehen. Wenn diese Rolle der Niere zugeschrieben wird, so müßte es höchstwahrscheinlich auf anorganische Hg-Verbindungen begrenzt werden. Das von Backström (1969) durchgeführte Experiment unterstützt diese Annahme. Er spritzte Methylquecksilber und Quecksilberchlorid intravenös den Forellen und fand den größten Teil des Hg-Chlorids in der Niere, die Leber zeigte dagegen 11 mal soviel organisches Quecksilber.

Suzuki et al. (1973) konnten an Freilandfängen bei Meeresfischen nachweisen, daß gesamt Quecksilbergehalt der von ihnen untersuchten Organe (Niere, Leber, Galle, Milz) im Vergleich zu Erfahrungswerten früherer Autoren erhöht war, wobei Niere und Kieme mehr anorganisches Quecksilber enthielten als die restlichen Organe.

Die Affinität von anorganischem Quecksilber gegenüber der Niere konnte auch von Giblin und Massaro (1973), Miettinen et al. (1970) und Weisbart (1973) bestätigt werden. Der letztere Experimentator setzte verschiedene Vertreter von Süßwasserfischen einer anorganischen Hg-Belastung aus und fand den höchsten Quecksilbergehalt in der Niere der Fische. Auch meine früheren Resultate (Braun und Yediler 1980) und jetzigen Ergebnisse stimmen mit eben erwähnten Arbeiten überein.

Über das physiologische Verhalten des Quecksilbers in der Fischniere berichten Benjamin und Mitarbeiter (1975). Ihre Vorversuche mit $HgCl_2$ -Zugabe bei lebenden Fischen (Flunder) lassen den Schluß zu, daß das Quecksilber selektiv in gewissen Segmenten der Niere angereichert wird und sie schädigt.

Im Gegensatz zur Kieme hat hohe Temperatur (20°C) beim Organ Niere einen positiven Einfluß auf die Hg-Akkumulation. Bei ihr bewirkt die niedrige Wassertemperatur (10°C) im sauerstoffreichen Milieu einen steilen Abfall der Hg-Menge.

Die Fische suchen generell warme Präferenzbereiche auf, deren Temperatur im Tagesrythmus um 5° - 10°C schwanken kann. Für Karpfen (eurytherm) werden Temperaturen unter 15°C und über 30°C als Streßtemperaturen angegeben (Schäperclaus 1979). Bei Fischen bewirkt eine Erhöhung der Umgebungstemperatur nicht nur eine Zunahme der Oxidationsvorgänge im Gewebe, sondern auch eine Zunahme der Fischaktivität und damit eine höhere Stoffwechselrate. So stieg z.B. beim Lachs bei einer Temperaturerhöhung um 5°C der O_2 -Verbrauch von 80 auf 110 $\text{mgO}_2/\text{kg.h}$ (Brett und Glass 1973). Hierbei ist auch der Schadstofftransport im Fisch intensiver, dieses wird durch die eigenen Versuche bestätigt. Auch andere Autoren (vgl. 1.2.1) bestätigen den positiven (akkumulationsfördernden) Einfluß der höheren Temperatur auf eine Schadstoffakkumulation.

Der Parameterkombination " $-\text{O}_2/+ \text{Temp.}$ " kommt die zweitwichtigste Bedeutung bei der Hg-Anreicherung zu. Die Interaktion der beiden Parameter verursacht eine "Potenzierung" der akkumulierten Hg-Menge im Fisch. Bei defizitärem Sauerstoffgehalt des Wassers steigt die Atmungsaktivität und damit die Stoffwechselrate der Karpfen. Die hohe Temperatur und geringer O_2 -Gehalt in Kombination bewirken eine verstärkte Anreicherung von Quecksilber in der Niere.

In der Hierarchie kommt die Parameterausprägung " $-\text{O}_2$ " an dritter Stelle der Wirkungsrangordnung. Der Streßfaktor " $-\text{O}_2$ " fördert bei Hg-Belastung in beiden Temperaturbereichen die Hg-Anreicherung. Die erhöhte Atmungsaktivität sollte hier, wie bei der Kieme als wichtigste Ursache betrachtet werden.

Bei der Kombination " $-O_2/+Ström.$ " kommt die Bedeutung des Faktors Strömung hier deutlich zum Ausdruck. Ausnahme ist der Versuch 1, wo die Hg-Anreicherung trotz fehlender Strömung sehr hoch ist. Hier überlagert die Wirkung der hohen Temperatur den Einfluß der Strömung. Die Interaktion der Ausprägungen " $-O_2/+Ström.$ " zeigt einen potenzierenden Effekt.

Die intensivste Quecksilberanreicherung bei der Parameterkombination " $-O_2/20°/+Ström.$ " kann wie folgt erklärt werden:

Der erhöhte Strömungsfluß fordert beim Fisch erhöhten Energieaufwand in Form erhöhter Schwimmaktivität. Der dadurch erforderliche höhere Sauerstoffbedarf steigert wiederum die Atemfrequenz und wirkt damit auf die Quecksilberakkumulation ein. Die Strömung und die damit verbundene höhere Stoffwechselrate bedingt auch eine höhere Exkretionsrate und damit geringere Schadstoffanreicherung unter normalen Sauerstoffverhältnissen (nicht jedoch bei $10°C$). Da bei zusätzlichem Sauerstoffmangel bzw. dadurch einsetzender Hyperventilation gleichzeitig ein verstärkter Kontakt mit dem quecksilberhaltigen Atemwasser stattfindet, wird die aufgenommene Schadstoffmenge größer als die durch Exkretion nach Außen abgegebene.

Die hohe Quecksilberkonzentration in der Niere bei hoher Temperatur, O_2 -Mangel und Strömung, ist dadurch zu erklären, daß die Faktoren Sauerstoff und Strömung sich dem Faktor Temperatur überlagern.

Abschließend kann man feststellen, daß die Organe Kieme und Niere bezüglich des Faktors Temperatur gegensätzliches Quecksilberakkumulationsverhalten aufweisen. Im Gegensatz zur Kieme reichert die Niere bei höherer Temperatur mehr Quecksilber an als bei niedriger Temperatur. Mit Ausnahme vom Versuch 1 nimmt die Quecksilberbelastung unter sauerstoffarmen Bedingungen zu.

Bei 2-fach Wechselwirkung (2-way-interaction) der Faktoren " $-O_2/+Temp.$ " liegt ein neuer interaktiver Effekt vor, wobei die Wirkung dieser Kombination auf die Hg-Anreicherung in diesem Organ potenziert wird.

Geringer Sauerstoffgehalt wirkt zwar im Gegensatz zur Kieme bei beiden Temperaturbereichen akkumulationsfördernd, die Wirkung dieser Parameterausprägung ($-O_2$) wird aber von der hohen Temperatur überlagert.

Während die Strömung allein das Akkumulationsgeschehen bei der Niere nicht deutlich beeinflusst, wirkt die Kombination von geringem Sauerstoffgehalt und starker Strömung ($-O_2/+Ström.$) erfahrungsgemäß fördernd auf das Hg-Anreicherungsverhalten. Dieser interaktive Effekt ist zwar nicht so ausgeprägt wie bei der Kieme, dennoch er als Kombination ($-O_2/+Ström.$) mehr Hg-Anreicherung als z.B. die Strömung allein.

Auch hier wird es deutlich, daß der Faktor Strömung insbesondere in Kombination mit " $-O_2$ ", beim Schadstoffakkumulationsgeschehen nicht unberücksichtigt bleiben darf und neben den "klassischen" Wasserparametern (O_2 , Temperatur, pH und Härte) auch Fließgeschwindigkeit und Strömungsverhältnisse der Gewässer zur Beurteilung der Schadstoffbelastung herangezogen werden müssen.

Die Niere reagiert auf die Hg-Belastung zwar insgesamt langsamer als die Kieme, sie akkumuliert aber stabiler. Der Grad der Widerspiegelung des Hg-Gehaltes eines Gewässers in der Fischniere kann als Kriterium für die langfristige Hg-Belastung des jeweiligen Gewässers dienen. Das bedeutet, daß dem Organ Niere eine "Indikatorfunktion" bei der Prognose über eine chronische Schadstoffbelastung der Gewässer zugeschrieben werden kann.

Leber

Beim zweiten in der vorliegenden Arbeit untersuchten Entgiftungsorgan, Leber, ergaben sich bei Betrachtung der Ergebnisse folgende Verhältnisse:

Das Hg-Akkumulationsgeschehen wird am stärksten vom Faktor "Temperatur" positiv beeinflusst. Die Parameterkombination " $-O_2$ /+Ström." übt den zweitstärksten Einfluß auf die Hg-Akkumulation in der Leber aus. An dritter Stelle kommt der Faktor "Strömung=10 cm/sec." und schließlich Sauerstoffmangel ($-O_2$). Es ergibt sich also folgende Hierarchie:

$$"+Temp., -O_2/+Ström., +Ström., -O_2"$$

Die Hg-Aufnahmemechanismen in der Fischleber sind bisher weitgehend unerforscht. Als zentrales Entgiftungsorgan spielt die Leber sicher auch bei der Hg-Elimination eine entsprechende Rolle. Nach einer Schadstoffexposition ist es zu erwarten, daß der Fisch durch Entgiftung den Schadstoff aus dem Körper zu entfernen versucht. Dies kann prinzipiell durch direkte Änderung der Primärstruktur eines Stoffes, durch Entfernung aus dem Stoffwechselfool oder durch Bindung an ein Trägermolekül mit relativ hoher Affinität für den Giftstoff erreicht werden. Als solcher Entgifter mit einer hohen Affinität für Zink-, Cadmium-, Quecksilber- und Kupferverbindungen wird Metallothionein, ein Protein mit einem hohen Cysteinanteil von mehreren Autoren (Marafante 1976, Noel-Lambot 1976, Matsumara et al. 1975) beschrieben. Es läßt sich unter anderem in verschiedenen Organen der Fische, Vögel und Säuger nachweisen. Obwohl die Grundfunktion dieses Proteins im Zinkstoffwechsel liegt, kann die Proteinhälfte auch Cd, Hg, Cu, Ag, Sn anstelle von Zink binden und damit als Entgifter fungieren.

Metallothionein läßt sich in großen Mengen in der Leber der Fische

und nur zu geringem Anteil in der Niere und Milz nachweisen. Die Giftigkeit des Quecksilbers auf einen Organismus scheint mit dem Erschöpfungszustand dieses Proteins zusammenzuhängen (McKim 1974). McKims Theorie lautet folgendermaßen: Wenn Quecksilber nicht mehr vom Metallothionein abgefangen werden kann, wird es von verschiedenen metallhaltigen Enzymen aufgenommen und z.B. bei Alkalin-Phosphatase gegen Zn oder Mn ausgetauscht (vgl. auch Hindricks et al. 1973). Damit ist die ursprüngliche Struktur der Metalloenzyme geändert, wodurch physiologische Schädigungen erklärbar werden (Brown 1978).

Mehrere Autoren (Hannerz 1968, Olson et al. 1978, Sastry und Gupta 1979) berichten, daß die Leber eine erhöhte Affinität gegenüber organischen Hg-Verbindungen (relativ zu anorganischen) aufweist. Es ist noch weitgehend unbekannt ob die Fische bereits methyliertes Hg selektiv aufnehmen, oder für die Umwandlung selbst verantwortlich sind. Imura et al. (1972) berichten über einen "Faktor" beim Gelbschwanz-Thunfisch, der die Umwandlung von anorganisch gebundenem Quecksilber in organisch gebundenes Quecksilber steuert. Auch Matsu-mura et al. (1975) sind von der Existenz eines methylierend wirkenden Faktors in der Fischleber überzeugt, vermuten jedoch, daß ihr "Faktor" nicht mit dem von Imura et al. gefundenen "Faktor" identisch ist.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Leberproben wiesen durchwegs deutlich weniger Hg-Konzentration auf, als die Kiemen und Nieren. Wenn angenommen wird, daß der methylierende "Faktor" bei den Versuchsfischen nicht so stark ausgeprägt ist, wie dies in den vorher erwähnten Experimenten der Fall war, kann der geringe Hg-Gehalt der Leber erklärt werden. Ein weiterer Grund könnte sein, daß das Quecksilber durch die Metalloprotein-Hg-Bindung schneller ins Blut gelangt und so aus der Leber eliminiert wird (Kägi und Hapke 1984).

Wie bei der Niere beeinflusst der Faktor Temperatur (20°C) die Quecksilberanreicherung in der Karpfenleber am stärksten. Beide Organe sind stoffwechselintensive Organe und sind in ihrer Funktionsausübung vor allem von der Umgebungstemperatur stark abhängig. Generell transportiert das Blut die Wirkstoffe und ihre Metaboliten nach der Leberpassage zu solchen Organen, die sie ausscheiden, wobei die Affinität der Substanzen die Speicherkapazität mitbestimmt. Auch beim Organ Leber wirkt die hohe Temperatur wie bei der Niere aus bereits erwähnten Gründen steigernd auf die Stoffwechselaktivität. Im Gegensatz zur Niere zeigt sich die Parameterkombination " -O_2 /+Ström." als zweitwichtigste Wirkungsgröße auf die Hg-Anreicherung. Die Ausprägungen "+Ström." und " -O_2 " zeigen zwar jeweils für sich betrachtet auch einen positiven Einfluß auf das Hg-Akkumulationsverhalten werden aber von der Wechselwirkung " -O_2 /+Ström." in ihrer Bedeutung verdrängt. Durch den interaktiven Effekt dieser Parameterkombinationen ist in beiden Temperaturbereichen eine Erhöhung der Hg-Anreicherung in der Leber zu verzeichnen. Die Zunahme der Hg-Konzentration unter diesen Bedingungen wird verständlich, wenn man die akkumulationsfördernden Wirkungen der Parameter " -O_2 " und "+Ström." bei Stoffwechselvorgängen der Fische berücksichtigt. Auch hier ist eine potenzierende Wirkung der Parameterkombination " -O_2 /+Ström." feststellbar.

Die Leber reagiert wie die Niere auf die Hg-Belastung langsamer als die Kieme, aber die Anreicherung des Schadstoffes ist stetiger, als es bei der Kieme der Fall ist. Eine Indikatorfunktion könnte theoretisch auch der Leber zugeschrieben werden. Unter Berücksichtigung ihren niedrigen Quecksilberwerte nach 34-tägiger Hg-Exposition wäre es jedoch effektiver, sich nur auf die Niere zu konzentrieren, da die Leber ja in allen Versuchen niedrigere Quecksilberwerte aufweist. Diese Aussage wird auch durch die Experimente von Hannerz 1968, Olson et al. 1978, Giblin und Edward 1973 bestätigt.

Muskulatur

Wie bereits im Kapitel 3 dargelegt, wird die Hg-Anreicherungs-geschwindigkeit und das Anreicherungsverhalten in der Muskulatur am stärksten von der Parameterkombination " $-O_2$ /+Ström." beeinflusst. Zweitwichtigste Wirkungsgröße ist Sauerstoffmangel ($-O_2$) und an dritter Stelle kommt die Strömung (10 cm/sec.). Die restlichen Parameter und deren Kombinationen zeigen keine Signifikanzen. Die Hierarchie der Wirkungsgrößen lautet wie folgt:

" $-O_2$ /+Ström., $-O_2$, +Ström."

Von der Muskulatur ist zwar bekannt, daß sie Quecksilber aufnimmt und wieder abgibt, über Einzelheiten der Vorgänge sind mir aber keine Arbeiten bekannt. Es lassen lediglich einige Arbeiten anführen, in denen das Quecksilberakkumulationsverhalten der Muskulatur untersucht wird wobei zusätzliche Informationen über die möglichen Veränderungen des Kontaminationsgrades eines Gewässers gewonnen werden können. Krocza und Haidl (1975) fanden einen durchschnittlichen Quecksilbergehalt der Muskulatur in Höhe von 0,09 ugHg/g NG bei von ihnen untersuchten Handelskarpfen. Wobeser et al. (1970) untersuchten die Quecksilberbelastung von insgesamt 81 Fischen aus 10 verschiedenen Arten. Die Skelettmuskulatur wies bei fast allen der aus unterschiedlichen Standorten des untersuchten Flusses (Saskatchewan-River, Kanada) stammenden Fischen über 1,0 ugHg/g NG Quecksilberbelastung auf. Einige Karnivoren enthielten sogar bis zu 9,0 ugHg/g NG, was weit über den für menschlichen Verzehr akzeptablen Wert liegt (vgl. Kap. 1.5).

Die von Radoux und Bouquegneau (1979) gefangenen Ziegenbarsche (*Serranus cabrilla*) hatten eine durchschnittliche Quecksilberkonzentration von 0,18 ugHg/g NG. Nach 10 tägiger Hälterung (bei 100 ugHg/l) erreichte die Muskulatur einen bereits für den menschlichen Genuß bedenklichen Quecksilbergehalt von 1,0 ugHg/g NG (vgl. Kap. 1.5)

wobei die Aussage von Chodynieski und Protasowicki (1978) : Es besteht eine signifikante Korrelation zwischen dem Quecksilbergehalt des Wassers und der Quecksilberkonzentration in der Muskulatur", bestätigt wird. Daß die Anreicherungs geschwindigkeit des Quecksilbers stark von der Schadstoffkonzentration im Wasser und der Expositionsdauer abhängig ist beweist auch die Arbeit von McKim et al. (1976). Sie stellten bei langer Versuchsdauer aber einer sehr niedrigen Hg-Konzentration im Wasser (0,03 ugHg/l, nach 20-38 Wochen) Quecksilberkonzentrationen in der Muskulatur der Bachforellen (*Salvelinus fontinalis*) fest, die den für den menschlichen Verzehr von der U.S Food and Drug Administration vorgeschriebenen Grenzwert (0,5 ugHg/g NG) zum Teil überschritten.

Trotz höherer Hg-Konzentration im Wasser als bei den Versuchen von McKim et al. ist in den eigenen Versuchen eine geringere Schadstoffbelastung der Karpfenmuskulatur zu verzeichnen. Das spricht dafür, daß der Zeiteffekt ein bedeutender Faktor bei Akkumulationsprozessen ist.

Die Quecksilberanreicherung in der Muskulatur bei Konzentrationen, die auch als natürliche Quecksilberbelastung der Gewässer angesehen werden (vgl. Kap. 1) kann auch ein Hinweis auf die Depotfunktion der Muskulatur für Schwermetalle sein.

Giblin und Massaro (1973) verabreichten Regenbogenforellen eine einmalige Dosis von radioaktiv markiertem Methylquecksilber in den Magen-Darm-Trakt wobei das Hälterungswasser quecksilberfrei war. Während die Quecksilbermengen der inneren Organe (Niere, Leber, Milz) in den ersten Versuchswochen (Versuchsdauer 100 d) ein Maximum erreichten und danach wieder abnahmen, stieg die Hg-Konzentration der Muskulatur bis zum 90. Versuchstag kontinuierlich an und erreichte dann einen Plateauwert. Die Experimentatoren fanden ca. 70% des verabreichten Methylquecksilbers in der Muskulatur wieder. Dieses Ergebnis bestätigt die Annahme, daß die Skelettmuskulatur für Schwermetalle eine Depotfunktion besitzt.

Suzuki et al. (1973) fanden bei einigen Meeresfischen (Japan) signifikante Korrelationen sowohl für anorganische- als auch für organische- Quecksilberverbindungen zwischen den Organen Niere/Leber/Galle und der Muskulatur (vgl. auch Vorversuch, Kap.3). Diese Ergebnisse konnten auch von Hannerz (1968), Wobeser et al. (1970), Radoux et al. (1979), Olson et al. (1978) bestätigt werden. Die Muskulatur kommt sowohl bei der Aufnahme als auch bei der Entgiftung mit dem Schadstoff in Berührung, da das Blut in beiden Fällen als Quecksilbertransporteur fungiert und parallel zur direkten Exkretion des Quecksilbers über Kieme, Niere und Faeces auch der Muskulatur zur Lagerung Quecksilber anbietet. Da die oben erwähnten Organe stoffwechselintensive Organe sind verläuft die Elimination des Schadstoffes dementsprechend schneller als bei der Skelettmuskulatur.

In den Hauptversuchen dieser Arbeit weist zwar die Muskulatur in dem Zeitraum von 34 Tagen relativ geringe Hg-Konzentrationen auf dennoch wird im folgenden, auch aufgrund der Ergebnisse der Vorversuche und früherer Versuche (vgl. Kap.3., Braun und Yediler 1980), das Anreicherungsverhalten des Quecksilbers in der Muskulatur zu interpretieren versucht.

Die Karpfenmuskulatur nimmt bei der Parameterkombination " $-O_2/+Ström.$ " vermehrt Quecksilber auf. Diese Umweltbedingungen müssen als Streß auslösend für die Karpfen gewertet werden, d.h. Kreislauf- und Organleistung werden in eine höhere Aktivitätsstufe versetzt. Für die Muskulatur bedeutet dies eine stärkere Durchblutung (Fry 1957, Brett 1964, Hettler 1976, Davis et al. 1963, Rao 1968). Wie schon dargelegt, ist die Quecksilberaufnahme der Kiemen unter Sauerstoffmangel ebenfalls intensiviert. Eine erhöhte Weitergabe an die Blutbahn ist dadurch erklärbar. Durch den raschen Anstieg des Quecksilberspiegels im Blut wird wahrscheinlich die Entgiftung bzw. Elimination durch Leber und Niere nicht in erforderlichen Maße gleich angelaufen sein, so daß Quecksilber in diesem Fall vermehrt von einem Depotorgan wie z.B. der Muskulatur aufgenommen werden kann.

Das direkte Eindringen des Quecksilbers über die Haut dürfte bei den vorgegebenen Konzentration sich weniger ausgewirkt haben, so daß die Rolle des Blutes als "Quecksilbertransporteur" im Vordergrund stehen dürfte. Wie aus früheren Versuchen bekannt, kann bei sehr hohen Quecksilberwerten (1000 $\mu\text{gHg/l}$) im Wasser durchaus auch eine rasche Anreicherung in der Muskulatur nach cutaner Durchdringung als möglich angesehen werden (Hannerz 1968, Evans 1969, Motais et al. 1969, Braun und Yediler 1980).

Die akkumulationsfördernde Wirkung der einzelnen Faktoren " $-\text{O}_2$ " und "+Ström." jeweils für sich ist verständlich, da die Bedingungen, für starke Schadstoffanreicherung: erhöhte Atemfrequenz und höhere Stoffwechselrate, durch das Auftreten einer der genannten Parameterausprägungen gegeben sind.

Im Gegensatz zu den anderen untersuchten Organen übt die Temperatur keine Wirkung auf die Quecksilberakkumulation aus, dasselbe gilt für hohen Sauerstoffgehalt.

Der potenzierende Einfluß der Bedingungskombination " $-\text{O}_2$ /+Ström." überlagert hier den sonst sehr wichtigen Einfluß der Temperatur. Es könnte auch damit zusammenhängen, daß die Wirkung der Temperatur bei diesem Organ erst nach längerer Quecksilberexposition zur Geltung kommen würde. Um diese Annahme nachzuweisen, hätten die Versuche über mehrere Monate ausgedehnt werden müssen.

Die Quecksilberkonzentration der Kontrollfische, die sich insbesondere in der Muskulatur bemerkbar machen können durch die Quecksilberbelastung des Fischfutters erklärt werden. Denn das während der Versuche verabreichte Forellenfutter, das aus Fischmehl hergestellt wird, wies durchschnittlich einen Quecksilbergehalt von 0,05 $\mu\text{gHg/g}$ TS (Trockensubstanz) auf.

Abschließend kann festgestellt werden, daß die Muskulatur in dem Zeitraum von 34 Versuchstagen relativ geringe Quecksilberkonzentra-

tionswerte aufweist (Ausnahme Versuch 8). Hier zeigen die Faktoren Temperatur und Sauerstoff (reich) keine Beeinflussung bei der Quecksilberanreicherung. Auch der Faktor Strömung hat für sich gesehen fast keine eindeutige Auswirkung auf das Quecksilberakkumulationsgeschehen. Erst die Interaktion zwischen "-O₂/+Ström." bewirkt eine deutliche Quecksilberakkumulation im Muskelfleisch der Karpfen. Die Kombination beider Faktoren wirkt potenzierend bei der Quecksilberakkumulation.

Aus diesen Ergebnissen wird es deutlich, daß die Muskulatur ein wesentlich schwächeres Hg-Anreicherungsverhalten als die anderen Organe zeigt, und kaum auf eine kurzzeitige Veränderung der Schadstoffkonzentration im Wasser reagiert. Das Hg-Anreicherungsverhalten dieses Organs wird am stärksten von Interaktion der Wasserparameter "-O₂/+Ström." beeinflusst.

4.3 Indikatorfunktion der Organe

Beim Vergleich der Ergebnisse der Hauptversuche läßt sich eine Indikatorfunktion bestimmter Organe bei einer Quecksilberbelastung ablesen. Diese Indikatorfunktion bezüglich ihrer Quecksilberkonzentration ist in den ersten Phasen (außer Niere im Versuch 1) stets gleich: Die Kieme reichert am stärksten das Quecksilber an, gefolgt von Niere, Leber und Muskulatur.

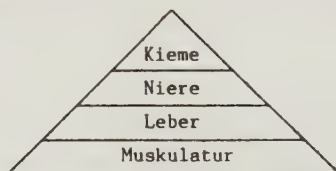
Kieme > Niere > Leber > Muskulatur

Als Folge des hohen Quecksilbergehaltes in der Kieme, wird die Quecksilberanreicherung in subcellulären Fraktionen verstärkt (Olson et al. 1978). Ein Wechsel der Quecksilberakkumulationsrate der verschiedenen Geweben demonstriert nicht nur Neuverteilung dieses Stoffes sondern reflektiert die metabolischen Disposition der Demethylierungsprodukte und deutet die Demethylierungs- oder aber Exkre-

tionsorte an. Kieme, Niere, Leber, Galle, Milz und Gastrointestinaltrakt sind wahrscheinlichsten Stellen der Demethylierung und Exkretion.

Nach 34-tägiger Einwirkung des Schadstoffes ist die Niere in zwei Fällen (Versuch 1 und Versuch 6) bereits höher belastet als die Kieme und dies stets, wenn die Fische bei 20°C Wassertemperatur dem HgCl_2 ausgesetzt waren.

Die Leber und Muskulatur liegen in der Reihenfolge des Kontaminationsgrades stets nach Kieme und Niere.



Die Hg-Anreicherungsgeschwindigkeit und -Konzentration der Kieme ist am stärksten von den Variationen der Umweltbedingungen abhängig. Die relativ schnelle Reaktion der Kieme bei wechselnder Belastung macht sie zu einem zuverlässigen Quecksilberindikator für den momentanen Verschmutzungsgrad eines Gewässers. Sie reagiert bereits nach 4-tägiger Quecksilberbelastung (S. Kap. 3) und weist deutliche Quecksilberkonzentrationen auf.

Die Reaktion der inneren Entgiftungsorgane Niere und Leber auf die Schadstoffbelastung ist zwar insgesamt langsamer, sie akkumulieren aber stabiler und sind daher bei langfristig wirkenden Umweltbedingungen die aussagekräftigeren Organe.

Die Muskulatur zeigt ein wesentlich geringere Quecksilberanreicherung als die inneren Organe und reagiert kaum auf kurzzeitig auftre-

tende subtoxische Quecksilberbelastung. Bei stetiger Quecksilberexposition über einen längeren Zeitraum hinweg ist jedoch ein gleichmäßiges Anwachsen der Quecksilberkonzentration in der Muskulatur zu beobachten (Braun und Yediler 1980). Da kurzzeitige subtoxische Belastung fast wirkungslos für die Schadstoffanreicherung in der Muskulatur bleibt, Langzeitexposition aber eine gleichförmige Quecksilberkonzentrationszunahme in der Muskulatur bewirkt, kann dieses Organ als Schadstoffintegrator für Dauerbelastung bezeichnet werden. Die integrierende Eigenschaft und die Depotwirkung der Muskulatur bietet daher auch die Möglichkeit, der Beurteilung des Gewässerzustandes in einen vergangenen Zeitraum.

Insgesamt läßt sich sagen, daß einem Organ keine eindeutige Indikatorfunktion zugeschrieben werden kann. Eine Kombination der Einzelaussagen, die von den Organen geliefert werden läßt durchaus, zuverlässige Aussagen über den aktuellen und vergangenen Verschmutzungsgrad eines Gewässers zu.

4.4 Anwendungsrelevanz und Konsequenzen der Ergebnisse

4.4.1 Für spätere Untersuchungen

Das synergistische Verhalten der Wasserparameter ist bei der Risikoeinschätzung der praxisrelevanten Toxizität von Schadstoffen unbedingt zu berücksichtigen und die Untersuchungen dementsprechend zu gestalten. Ein Versuch zur Kennzeichnung der Wirkung oder der Ursache von gewässertoxikologisch bedenklichen Stoffen, unter Berücksichtigung eines einzigen Wasserparameters, kann zu Fehlschlüssen führen (vgl. Ergebnisse der 3-faktoriellen VA).

4.4.1.1 Für gesetzliche Bestimmungen

Die Ergebnisse sollten ebenso in gesetzlichen Bestimmungen und Immissionsauflagen einfließen. Nur wenn die Grundparameter eines Vorfluters wie Temperatur, Sauerstoff und Strömung berücksichtigt werden, können Schutzmaßnahmen greifen, weil nur so das Ausmaß der Schadstoffakkumulation abgeschätzt werden kann. Wie die Praxis gezeigt hat erfüllt eine nicht unmittelbar akkumulationsbezogene Einleitungsvorschrift nicht die erforderliche Sicherheit für Wasserorganismen und deren Konsumenten z.B. auch dem Menschen.

Der Verzehr von Aalen aus dem Rhein dürfte z.B. nicht uneingeschränkt erlaubt werden, nachdem ihr hoher Gehalt an Hexachlorbenzol (HCB) bekannt geworden war. Die Gewässerschutzauflagen für die HCB-produzierende Firma hatten nur die akuttoxische Konzentration in dem Vorfluter, nicht jedoch die Anreicherung im Fisch berücksichtigt.

4.4.2 Weitere Konsequenzen für die Umwelt

In dieser Arbeit wurden nur sublethale Quecksilberdosen appliziert. Andere Untersuchungen zeigen, daß sublethale Schadstoffeinwirkungen auf Fische unter "normalen Umweltbedingungen" (z.B. genügend Sauerstoff) durchaus chronische physiologische Schädigungen, geringere physische Leistung, sowie geringere Reproduktion und Verhaltensänderungen zur Folge haben können.

Wenn der synergistische Einfluß der nachteilig veränderten Wasserparameter die Akkumulationsgeschwindigkeit der Schadstoffe erhöht, so können die oben erwähnten Schädigungen vorangetrieben werden.

4.4.3 Anregungen für weitere Forschungsarbeiten

4.4.3.1 Unterschiedliche Hg-Konzentrationen im Wasser

Es ist vorstellbar, daß Plateauwerte der Quecksilberkonzentration im Fisch erst ab einer bestimmten Mindest-Schadstoffkonzentration im Wasser auftreten. Unterhalb dieser Schadstoffkonzentration sind möglicherweise die physiologischen Schädigungen so gering, daß die Eliminationsmechanismen den Anreicherungs Vorgang so stark inhibieren, daß während der zu erwartenden Fischlebensdauer kein Plateauwert erreicht werden kann.

Außerdem empfiehlt sich die Durchführung der Versuche mit unterschiedlichen Quecksilberkonzentrationen deshalb, weil Zusammenhänge der Schadstoffkonzentration und der Anreicherungsgeschwindigkeit bisher kaum bekannt sind.

4.4.3.2 Ausprägungen der Wasserparameter im intermediären Bereich

Um die Abhängigkeit der Schadstoffanreicherung in Abhängigkeit der Wasserparameter (Sauerstoff, Temperatur, Strömung), wie sie in den graphischen Darstellungen (Abb. 5-8) gezeigt sind auch in den Bereichen zwischen den Ausprägungen abzusichern, ist es erforderlich, die Versuche mit mindestens vier Parameterwerten durchzuführen. Dies würde Anzahl der Versuche auf 64 erhöhen.

ZUSAMMENFASSUNG

Die vorliegende Arbeit besteht aus zwei Teilen. Im ersten Teil der Experimente werden in einer Reihe von Voruntersuchungen die optimalen Bedingungen für die Durchführung der Hauptversuche im zweiten Teil der Arbeit ermittelt.

Die Hauptversuche sollen die Frage nach dem synergistischen Einfluß dreier Umweltfaktoren (Sauerstoff, Temperatur und Strömung) auf das Akkumulationsverhalten der vier inneren Organe (Kieme, Niere, Leber und Muskulatur) beim Karpfen (*Cyprinus carpio* L.) bei subtoxischer Hg-Exposition (0,5 µgHg/l) beantworten. Die Versuche wurden unter standardisierten Laborbedingungen durchgeführt.

Voruntersuchungen

Um bei den Fragestellungen der Hauptversuche von den optimalen Versuchsbedingungen und ökonomischen Versuchsanordnungen ausgehen zu können, wurden die nachfolgend beschriebenen Vorversuche durchgeführt.

Jeweils 22 Karpfen (K1) wurden einer bis zum Versuchsende anhaltenden Quecksilberbelastung von 0,5 µgHg/l ausgesetzt. Das Quecksilber wurde jeweils in einer Serie als $\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$ und HgCl_2 verabreicht. Nach 20 Tagen wurden in Zeitabschnitten von etwa 10 Tagen 2 Fische zur Bestimmung der angereicherten Quecksilbermengen in verschiedenen Organen (Kieme, Niere, Leber, Muskulatur) entnommen.

Die Voruntersuchungen dauerten insgesamt 2 1/2 Monate. Nach dieser kontinuierlichen Quecksilbereinwirkung war noch kein Hinweis auf eine Quecksilbersättigung in den Organen zu erkennen. Alle vier untersuchten Organe wiesen deutlich höhere Quecksilberanreicherungs-werte (Signifikanzen auf 1%-Niveau) gegenüber den Kontrollfischorga-

nen auf. Die erwähnten Organe zeigten unterschiedliches Anreicherungsverhalten, jedoch in beiden Versuchen läßt das Akkumulationsvermögen ein gleichartiges Muster erkennen:

Niere >> Kieme > Leber > Muskulatur

Die Ergebnisse zeigten für HgCl_2 eine schnellere Anreicherung als für $\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$. Zudem ergaben sich bei HgCl_2 -Exposition positive Korrelationen der untersuchten Organe (Außer Niere/Kieme) auf dem 5%-Niveau. Die beiden genannten Eigenschaften der anorganischen Quecksilberverbindung Quecksilberchlorid, führten zu der Entscheidung, sie bei den Hauptversuchen als Kontaminant einzusetzen.

Der Verlauf der Anreicherung und die gefundenen Beziehungen zwischen den Organen ließen kein einzelnes Organ eindeutig als besten Repräsentanten für den Quecksilberschmutzungsgrad der Gewässer angeben. Deshalb wurde in den Hauptversuchen diese Frage der Zuverlässigkeit der "Indikatorfunktion" der Organe eingehender untersucht.

Es stellte sich zusätzlich heraus, daß die bei den Voruntersuchungen eingesetzten Versuchsbecken (Abb. 1) nicht für Strömungsversuche geeignet waren -Entstehung der Turbulenzen im Schwimmbereich der Fische- weshalb zunächst neue Versuchsbecken (Abb. 2) entwickelt wurden.

Hauptversuche

Die drei wichtigsten Wasserparameter, Temperatur, Sauerstoff und Strömung, die in unserer Umwelt durch menschliche Eingriffe vielfach verändert werden und prinzipiell als akkumulationsmodifizierende Faktoren agieren können, wurden in jeweils zwei extremen Ausprägungen miteinander kombiniert. Auf diese Weise wurden acht unterschiedliche "Biotopverhältnisse" unter Laborbedingungen simuliert.

Versuch 1	:	20°C, ca. 9.5 mgO ₂ /l,	v= 0 cm/sec.
Versuch 2	:	" "	, v= 10 cm/sec.
Versuch 3	:	10°C, "	, v= 0 cm/sec.
Versuch 4	:	" "	, v= 10 cm/sec.
Versuch 5	:	20°C, 4,5 mgO ₂ /l,	v= 0 cm/sec.
Versuch 6	:	" "	, v= 10 cm/sec.
Versuch 7	:	10°C, "	, v= 0 cm/sec.
Versuch 8	:	" "	, v= 10 cm/sec.

Alle Versuche wurden ohne Sediment und mit einem relativ abiotischen Versuchswasser durchgeführt. Die einsömmerigen (K1) Karpfen (25 Fische/Versuch) bekamen Quecksilber als HgCl₂ kontinuierlich und ausschließlich auf dem Belastungspfad Wasser → Fisch. Die Quecksilberkonzentration des Versuchswassers betrug 0,5 µgHg/l, bei einem Versuchsdauer von 34 Tagen. Wie in den Voruntersuchungen deutet auch in den Hauptversuchen nichts daraufhin, daß die Quecksilbersättigung in den Organen erreicht wurde. Die "Rangordnung" der Organe bezüglich ihrer Quecksilberkonzentration ist am Anfangsstadium der Versuche (außer im Versuch 1) stets gleich. Die Kiemen reichern am stärksten das Quecksilber an, gefolgt von Niere, Leber und Muskulatur. Nach 34 tägiger Einwirkung des Schadstoffes ist die Niere in zwei Fällen (Ver.1 und Ver.6) höher belastet als die Kiemen und dies stets, wenn die Fische bei 20°C Wassertemperatur dem Quecksilber ausgesetzt sind. Die Leber liegt in der "Rangordnung" stets nach der Kieme und Niere.

Die Ergebnisse der statistischen Auswertungen, ANOVA (Varianzanalyse) und die MCA (Multiple Classification Analysis) verdeutlichen, daß die Wirkung auf ein bestimmtes Organ für jeden Wasserparameter - Temperatur, Sauerstoff, Strömung- und jede Parameterkombination unterschiedlich ist.

Für die vier untersuchten Karpfenorgane zeichnen sich demnach fol-

genden Hierarchien in der Wirkung der einzelnen Wasserparameter und deren Kombinationen aus:

Kieme:	$-O_2$, $-Temp.$, $-O_2/+Ström.$, $+Ström.$
Niere:	$+Temp$, $-O_2/+Temp.$, $-O_2$, $-O_2/+Ström.$
Leber:	$+Temp.$, $-O_2/+Ström.$, $+Ström.$, $-O_2$
Muskulatur:	$-O_2/+Ström.$, $-O_2$, $+Ström.$

Kieme

Bei der Kieme erhöhen geringe Sauerstoffkonzentration (O_2), niedrige Wassertemperatur ($-Temp.$), die Parameterkombination " O_2 -arm/ $+Ström.$ " ($-O_2/+Ström.$) und Strömung $v=10\text{cm/sec.}$ ($+Ström.$) in absteigender Reihenfolge die Quecksilberanreicherung.

Dies bedeutet, daß die Kieme unter Sauerstoffmangel ($4,5\text{ mgO}_2/\text{l}$) die stärkste Quecksilberbelastung bei einer subtoxischen Quecksilberkonzentration zeigt. Die Quecksilberanreicherung ist bei der niedrigen Temperatur (10°C) bis auf eine Ausnahme, Versuch 1, höher als bei 20°C -Versuchen.

Bei der Parameterkombination " $-O_2/+Ström.$ " liegt ein interaktiver Effekt vor, hierbei zeigt sich der Sauerstoffeffekt strömungsabhängig. Die Strömung allein wirkt sich nur bedingt akkumulationsfördernd aus.

Die Parameterkombination " $-O_2/-Temp./+Ström.$ " bewirkt offensichtlich die höchste Quecksilberanreicherung in diesem Organ (S. auch Abb. 22a).

Niere

Für die Niere ergibt sich folgende Hierarchie in der Wirkung der einzelnen Wasserparameter bzw. deren Kombinationen:

" +Temp., -O₂/+Temp., -O₂, -O₂/+Ström."

Im Gegensatz zur Kieme reichert die Niere bei höherer Temperatur mehr Quecksilber an als bei niedriger Temperatur.

Der Parameterkombination "-O₂/+Temp." kommt die zweitwichtigste Bedeutung zu. Die Interaktion der beiden Parameterausprägungen verursacht eine Potenzierung der akkumulierten Quecksilbermenge.

Das reduzierte Sauerstoffangebot fördert die Quecksilberanreicherung bei beiden Temperaturbereichen.

Die Bedeutung des Faktors Strömung kommt beim Synergismus der Parameterausprägungen "-O₂/+Ström." deutlicher zum Ausdruck. Der Interaktive Effekt dieser Kombination bewirkt deutlich hohe Quecksilberakkumulation bei diesem Organ.

Leber

Für das zweite in der vorliegenden Arbeit untersuchten Entgiftungsorgan, Leber, ergibt sich folgende Hierarchie:

" +Temp., -O₂/+Ström., +Ström., -O₂"

Hohe Wassertemperatur fördert die Quecksilberanreicherung in der Leber, wie in der Niere am stärksten.

Die Parameterkombination " $-O_2$ /+Ström." ist die zweitwichtigste Wirkungsgröße für die Quecksilberakkumulation.

Die Parameter "+Ström." und " $-O_2$ " wirken einzeln weniger stark auf das Hg-Akkumulationsverhalten ein als bei kombinierter Wirkung.

Muskulatur

Bei der Muskulatur läßt sich folgende Hierarchie der Wirkungsgrößen feststellen:

" $-O_2$ /+Ström., $-O_2$, +Ström."

Die Hg-Anreicherungs geschwindigkeit wird in der Muskulatur am stärksten von der Parameterkombination " $-O_2$ /+Ström." beeinflusst. Die zweitwichtigste Wirkungsgröße ist Sauerstoffmangel ($-O_2$), an dritter Stelle schließlich kommt die Strömung. Im Gegensatz zu den anderen Organen wird die Quecksilberakkumulation von Temperatur und Sauerstoffsättigung nicht nachweisbar geprägt.

Anhand der Ergebnisse läßt sich zusammenfassend feststellen, daß das Atmungsorgan Kieme als Indikatororgan für den momentanen Quecksilberbelastungszustand eines Gewässers herangezogen werden kann, weil sie selbst auf geringfügige Veränderungen der chemischen bzw. physikalischen Umweltparameter (Schadstoffgehalt, Sauerstoffgehalt, Temperatur und Strömung) anspricht.

Die Niere reagiert auf die Schadstoffbelastung insgesamt langsamer als die Kieme, sie akkumuliert aber stetiger. Der Grad der Widerspiegelung des Quecksilbergehaltes eines Gewässers in der Fischniere kann als Kriterium für die langfristige Quecksilberbelastung des jeweiligen Gewässers dienen.

Bei der benützten kurzen Expositionsdauer (34 tage) lassen sich über

die Quecksilberakkumulation in der Muskulatur nur bedingt Aussagen machen. Die Anreicherungsgeschwindigkeit bzw. die Quecksilberkonzentration in der Fischmuskulatur steigt jedoch unter Streßbedingungen (wie z.B. Sauerstoffmangel oder Strömung) deutlich an.

Weiter läßt sich feststellen, daß die Wirkung auf ein bestimmtes Organ für jeden Parameter und jede Parameterkombination (Ausnahme: " $-O_2/+Ström.$ ") unterschiedlich ist.

Sauerstoffmangel fördert in allen Organen die Quecksilberakkumulation. Die Strömung begünstigt die Schadstoffakkumulation in allen Organen außer der Niere.

Hohe Wassertemperatur fördert die Quecksilberanreicherung in Niere und Leber. In der Kieme dagegen ist die Quecksilberakkumulation bei niedriger Temperatur höher. Der Faktor Temperatur stellt somit eine Besonderheit dar, da im Gegensatz zu Sauerstoff und Strömung das Anreicherungsverhalten durch unterschiedliche Ausprägung begünstigt wird (Umkehr des Vorzeichens!).

Bei der interaktiven Wirkung der Parameter ist der Kombination " $-O_2/+Ström.$ " die größte Bedeutung beizumessen, da diese Kombination bei allen Organen zur höchsten Quecksilberanreicherung führt.

Der Einfluß dieser Kombination ist bei allen Organen stärker als die isolierte Wirkung der Parameterausprägung "+Ström.". Dies deutet darauf hin, daß die Interaktion der Parameter " $-O_2$ ", "+Ström." einen reinen Kombinationseffekt (Synergismus) darstellt.

Praktische Bedeutung der Ergebnisse

Das synergistische Verhalten der Wasserparameter ist bei der Risikoeinschätzung der praxisrelevanten Toxizität unbedingt zu berücksichtigen:

Das Zusammenwirken der Parameter Temperatur und Strömung potenziert die getrennten Wirkungen der Einzelparameter.

Die Variation des Parameters Sauerstoff überlagert sich den Veränderungen der Parameter Temperatur und Strömung stark akkumulationsfördernd. Die Interaktionen der einzelnen Wasserparameter erlauben nicht die Kennzeichnung von gewässertoxikologisch bedenklichen Stoffen unter Berücksichtigung eines einzigen Umweltparameters. Eine nur unmittelbar akkumulationsbezogene Einleitungsvorschrift, kann zu Fehlschlüssen führen und die erforderliche Sicherheit für Wasserorganismen und deren Konsumenten nicht gewährleisten.

LITERATURVERZEICHNIS

- Akagi, H., D.C. Mortimer and D.R. Miller (1979) Mercury methylation and partition in aquatic systems. Bull. Environm. Contam. Toxicol. 23, 372-376
- Amend, D. (1969) Some factors influencing susceptibility of rainbow trout to acute toxicity of an ethyl mercury phosphate formulation. Zitiert in Hartung, R. and D.D. Bertram (1972) Ann Arbor Science Publishers Inc.
- Andren, A.W. and J.O. Nriagu (1979) The global cycle of mercury. In the Biogeochemistry of Mercury in the Environment. Ed. J.O. Nriagu, 1-22, Amsterdam: Elsevier/North Holland.
- Backström, J. (1969) Distribution studies of mercury pesticides in quail and some freshwater-fishes. Acta Pharmacol. Toxicol., 27, 5-103.
- Banat, K., U. Förstner and G. Müller (1972) Schwermetalle in den Sedimenten des Rheins. Umschau in Wiss. und Tech., 192-193.
- Baska, S.M., K.S. Prasada Rao, K.R.S. Sambagive Rao and K.V. Ramana Rao (1984) Respiratory potentials of the fish (*Tilapia mossambica*) under malathion, carbonyl and lindane intoxication. Bull. Environ. Contam. Toxicol., 570-574.
- Benjamin, F.T., T.J. Raymond and Sahaphong (1975) Cellular effects of mercury on fish kidney tubules. The pathology of fishes, ed. by William, E. Ribelin, G. Migaki, the University of Wisconsin Press.
- Bentley, P.J. (1962) Permeability of the skin of the cyclostome lampetra fluvialitis to water and electrolytes. Comp. Biochem. Physiol., 6, 95-97.
- Borneff, J. (1972) Forderungen an die Rheinhaltung unserer Binnengewässer aus hygienischer Sicht. In: H. Schultze Umwelt-Report unser verschmutzter Planet", Frankfurt Umschau-Verlag, 87-91.

- Boudou, A., F. Ribeyre, A. Delarche et R. Marty (1980) Bioaccumulation et bioamplification des derives du mercure par un consommateur de troisieme ordre: *Salmo gairdneri* - incidences du facteur temperature. *Water Research* Vol. 14, 61-65.
- Boudou, A., A. Delarche, F. Ribeyre, and R. Marty (1979) Bioaccumulation and bioamplification of mercury compounds in a second level consumer, *Gambusia affinis* -Temperature affects. *Bull. Environm. Contam. Toxicol.* 22, 813-818.
- Brafield, A.E., and P. Mathiessen (1976) Oxygen consumption by sticklebacks (*Gasterosteus aculeatus* L.) exposed to zinc. *J. Fish Biol.*, 9, 359-370.
- Braun, F. und A. Yediler (1980) Zur Bedeutung der Fische als Umweltindikatoren, Laboratoriumsversuche an Karpfen (*Cyprinus carpio* L.) mit Quecksilber. *Acta hydrochim. hydrobiol.*, 8, 3, 259-267.
- Breder, C.M. and F. Halpern (1946) Innate and acquired behaviour affecting of fishes. *Physiol. Zool.*, 19, 154-190.
- Brett, J.R. and N.R. Glass (1973) Metabolic rates and critical swimming speeds of sockeye salmon (*Oncorhynchus nerka*) in relation to size and temperature. *J. Fish. Res. Bd. Can.*, 30, 379-387.
- Broda, E. (1973) Wie treten nützliche und schädliche Spurenelemente in die Nahrungskette ein? *Naturw. Rdsch.*, 26. Jhrg., H9.
- Brown, E.M. (1957) *The physiology of fishes.* Academic Press Inc., Publishers, New York
- Brown, D.A., and T.R. Parsons (1978) Relationship between cytoplasmatic distribution of mercury and toxic effects to zooplankton and chum salmon (*Oncorhynchus keta*) exposed to mercury in a controlled ecosystem. *J. Fish. Res. Bd. Can.*, 29, 1463-1466
- Cairns, J., and A. Scheier (1957) The effects of temperature and hardness of water upon the toxicity of zinc to the common bluegill (*Lepomis macrochirus* Raf.) *Notul. Nat.* 299
- Cappon, C.J. and J.C. Smith (1981) Mercury and selenium content and chemical form in fish muscle. *Arch. Env. Contam. Toxicol.*, 10, 305-319

- Chodynieski, A. and M. Protasowicki (1978) Total mercury content of carp muscle (*Cyprinus carpio* L.) as an indicator of water pollution. *Acta hydrochim. Hydrobiol.*, 6, 175
- Clarkson, T.W. (1983) Methylmercury toxicity to the mature and developing nervous system. In *Biological Aspects of Metals and Metal Related Diseases*, ed. B. Sarker, New York, Raven Press
- Clarkson, T.W., R. Hawada and, L. Amin-Zaki (1984) Mercury changing metal cycles and human health, ed. J.O. Nriagu, 285-309, Dahlem Konferenzen 1984, Berlin, Heidelberg, N.Y., Tokyo: Springer Verlag
- Clubb, W.R., A.R. Gautun and J.L. Lords (1975) Synergism between dissolved oxygen and cadmium toxicity in five species of aquatic insects. *Environmental Res.*, 9, 285-289
- Crawshaw, L.I. (1977) Physiological and behavioral reactions of fishes to temperature change. *J. Fish. Res. Bd. Can.*, 34, 730-734
- Cunningham, P.A. and M.R. Tripp (1973) Accumulation and Depuration of mercury in the american oyster (*Crassostrea virginica*). *Marine Biol.*, 20, 14
- Curtis, M.W., T.L. Copeland, C.H. Ward (1979) Acute toxicity of 12 industrial chemicals to freshwater and saltwater organisms. *Water Research*, Vol. 13, 137
- Dahlberg, M.L., D.L. Shumway, and P. Doudoroff (1968) Influence of dissolved oxygen and carbon dioxide on swimming performance of largemouth bass and coho salmon. *J. Fish. Res. Bd. Can.*, 25, 49-70
- Dall'Aglia, M. (1968) Abundance of mercury in 300 natural water samples from Tuscany and Latium origin and distribution of the elements. L.H. Ahrens, ed. Pergamon Press, 1065
- DFG-Forschungsbericht (1982) Schadstoffe im Wasser, Band I, Metalle, hrsg. von J.Reichert und U. de Haar, unter Mitarbeit von F. Dietz, Harald Boldt Verlag, Boppard
- Ellgaard, E.G., J.E. Tusa and A.A. Jr. Malizia (1978) Locomotor activity of the bluegill (*Lepomis macrochirus*) hyperactivity induced by sublethal concentrations of cadmium, chromium and zinc. *J. Fish. Biol.*, 1, 19-23
- Eriksson, E. (1967) Mercury in nature. *Oikos Supplementum*, 9, 13

- Evans, D.H. (1969) Studies on the permeability to water of selected marine, freshwater and euryhaline teleosts. J. Exp. Biol., 50, 689-703
- Fagerström, T., B. Åsell and A. Jernelöv (1974) Model for accumulation of mercury in northern pike (*Esox lucius*) Oikos 25, 14-20
- Femreite, N. and L.M. Reynolds (1973) Mercury contamination of fish in northwestern Ontario. J. Wild Management 37, 62-68
- Förstner, U. und G. Müller (1974) Schwermetalle in Flüssen und Seen. Springer Verlag, Berlin Heidelberg N.Y.
- Frimmel v. F. (1976) Remobilisierung von Quecksilber; Modellversuche und ihre praktische Bedeutung. z.f. Wasser und Abwasserforschung, 9.Jahrg., 6, 170-175
- Fry, F.E.J. (1957) Aquatic respiration of fish. In M.E. Brown, Physiology of fishes, Vol.I, Academic Press, Inc. New York
- Fry, F.E.J. (1971) The effect of environmental factors on the physiology of fish. Fish physiology, ed. Hoar W.S., Randall, D.J., Vol. 6, 198, N.Y., London, Academic Press
- Gavis, J. and J.F. Ferguson (1972) The cycling of mercury through the environment. Water Research, 6, 989-1008
- Giblin, F.J., and E.J. Massaro (1973) Pharmacodynamics of methylmercury in the rainbow trout. Tissue uptake, distribution and excretion. Toxicol. Appl. Pharmacol., 24, 81-91
- Greig, R.A., and J. Krzynowek (1979) Mercury concentrations in three species of tunas collected from various oceanic waters. Bull. Environm. Contam. Toxicol., 22, 120-127
- Hannerz, L. (1968) Experimental investigations on the accumulation of mercury in water organisms. Report Institut of Freshwater Research Fishery Board of Sweden 48, 120-176
- Hapke, H.J. (1973) Hygienisch-Toxikologische Bedeutung von Quecksilber im Trinkwasser. SchrReihe Ver. Was.-Boden-Lufthyg., Berlin-Dahlem, H.40, 179-188, Stuttgart
- Harada, Y. (1966) Study group on Minamata Disease, ed. M. Katsuma. Kumamoto: Kumamoto University

- Hartung, R. und M.D. Dinman (1972) Environmental mercury contamination. By Ann Arbor Science Publishers, Inc. Ann Arbor, Michigan 48-106
- Hindriks, F.R., A. Groen and A.M. Kroon (1973) On the relation of heavy metals to the activity and heat stability of alkaline phosphatase from human placenta. Biochem. Biophys. Acta, 315, 94
- Hödson, P.W., and J.B. Sprague (1975) Temperatur induced changes in acute toxicity of zinc to atlantic salmon (*Salmo salar*). J. Fish. Res. Bd. Can., 32, 1-10
- Huhn, J.B. (1969) Chemical composition of rainbow trout urine following acute hypoxic stress. Trans. Am. Fish. Soc., 98, 20-22
- Hughes, G.M. (1978) Effects of low oxygen and pollution on the respiratory systems of fish. Stress and fish, ed. by A.D. Pickering, Academic Press
- Igata, A., K. Niina, R. Hamada, and Y. Ohkatsu (1975) The late onset of organic mercury intoxication after exposure. In studies on the health effects of alcyil mercury in Japan, 178-189, Japan; Environmental Agency
- Imura, N., S.K. Pan, and T. Ukita (1972) Methylation of inorganic mercury with liver homogenate of tuna fish. Chemosphere 5, 197-201
- Järvenpää, T., M. Tillander and J.K. Miettinen, J. K. (1970) Methylmercury halftime of elimination in flounder, pike and eel. Suom. Kem., B 43, 37-43
- Jernelöv, A., and H. Lann (1971) Mercury accumulation in food chains. Oikos 22, 403-406
- Johnels, A.G., W. Westenmark, P. Berg, and B. Sjöstrud (1967) Pike (*Esox lucius* L.) and some other aquatic organism in Sweden as indicators of mercury contamination in the environment. Oikos 18, 323-333
- Kägi, J.H.R., H.J. Hapke (1984) Biochemical interactions of mercury, cadmium, and lead. In changing metal cycles and human health, ed. J.O. Nriagu, 237-250. Dahlem Konferenz 1984. Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo; Springer Verlag

- Kausch, H. (1972) Stoffwechsel und Ernährung der Fische. In Handbuch der Tierernährung, 2. Band, Verlag Paul Parey
- Klein, D.H. (1972) Some estimates of natural levels of mercury in the environment. In Hartung and B.D. Dinman (Eds.) Environmental mercury contamination, 25-29, Ann Arbor Science Publishers, Inc. 1972
- Konrad, J.G. (1972) Mercury contents of bottom sediments from Wisconsin rivers and lakes. In: R. Hartung and B.D. Dinman (Eds.), Environmental mercury contamination, 52-58, Ann Arbor, Science Publishers Inc.
- Kramer, H.J., and B. Neidhart (1975) The behaviour of mercury in the system water-fish. Bull. Environm. Contam. Toxicol. 14, 699-703
- Kreuzer und Wismath (1978) Mündliche Mitteilung
- Krocza, W. und W. Haidl (1975) Zur Frage der Toleranzgrenze vom Quecksilber in Fischen. Z. f. Österreichs Fischerei, 7, 101-104
- Krocza, W., H. Pechlaner und M. Wetscher (1973) Studie über den Quecksilbergehalt in Fischen aus einigen österreichischen Gewässern. Österreichs Fischerei, 28, H.4, 49-51
- Kudo, A., H. Nagase, and H. Ose (1982) Proportion of methylmercury of total amount of mercury in river waters in Canada and Japan. Water Res., 16, 1011-1015
- Kutty, M.N. (1968) Respiratory quotient in goldfish and rainbow trout. J. Fish. Res. Bd. Can., 25 (98), 1689-1728
- Kutty, M.N. (1969) Oxygen consumption in the mullet (*Liza macrolepis*) with special reference to swimming velocity. Marine Biology 4, 239-242
- Kutty, M.N. and Saunders, R.L. (1973) Swimming performance of young atlantic salmon (*Salmo salar*) as affected by reduced ambient oxygen concentration. J. Fish. Res. Bd. Canada, Vol. 30, No 2, 223-227
- Lloyd, R. (1961) Effect of dissolved oxygen concentration on the toxicity of several poisons rainbow trout (*Salmo gairdneri* R.) J. Exp. Biol. 38, 447-456
- Marafante, E. (1976) Binding of mercury and zinc to cadmium-binding protein in liver and kidney of goldfish (*Carassius auratus* L.). Experientia 32, 149-150

- Matsumara, F., Y. Gotoh Doherty, K. Furuhashi, and G.M. Boush (1975) Incorporation of ^{203}Hg into methylmercury in fish liver. Studies on biochemical mechanism in vitro. Environmental Res., 10, 224-235
- McCarthy, L.S., J.A.C. Henry, and A.H. Houston (1978) Toxicity of Cadmium to goldfish (*Carassius auratus*) in hard and soft water. J. Fish. Res. Bd. Can. 35, 35-42
- McKim, J.M., G.F. Olson, G.W. Holcombe, and P. Hunt (1976) Longterm effects of methylmercuric chloride on three generations of brook trout (*Salvelinus fontinalis*) Toxicity, accumulation, distribution, and elimination. J. Fish. Res. Bd. Can. 33
- McKim, J.M. (1981) A direct measure of the uptake efficiency of xenobiotic chemicals across the respiratory epithelium of brook trout (*Salvelinus fontinalis*). Que. Con. Tech. Rep. Fish. Aquat. Sci. 990, 108-112, (Toxicity workshop, 1980, Montreal)
- McKone, L.E., R.G. Young, C.A. Bache, and D.J. Lisk (1971) Rapid uptake of mercuric ion by goldfish. Environ. Sci. Technol., 5, 1138-1139
- McLeod, J.C., and E. Pessah (1973) Temperature effects on mercury accumulation, toxicity, and metabolic rate in rainbow trout (*Salmo gairdneri*). J. Fish. Res. Bd. Can. 30, 485-492
- Miettinen, J.F., M. Heyround, and S. Keches (1972) Mercury as hydrospheric pollutant. II. Biological half-time of methylmercuric in four Mediterranean species; fish, crab, and molluscs. Marine pollution and sea life. Fishing News (Books), London
- Miller, D.R., and H. Akagi (1979) pH affects mercury distribution not methylation. Ecotoxicol. Environ. Safety 3, 36-38
- Moore, J.W. and D.J. Sutherland (1980) Mercury concentrations in fish inhabiting two polluted lakes in Northern Canada. Water Res., 14, 903-907, Pergamon Press Ltd., Printed in G.B.
- Motais, R., J. Isaia, J.C. Ranbin, and J. Maetz (1969) Adaptive changes of the water permeability of the teleostean gill epithelium in relation to external salinity. J. Exp. Biol., 51, 529

- Mott, J.C. (1957) The cardiovascular system of fish. The physiology of fishes, ed. by Margaret E. Brown, Vol.1, Metabolism. Academic Press Inc., Publishers, N.Y.
- Muir, B.S. (1972) Oxygen consumption of the euryhaline fish aholehole (*Kuhlia sandvicensis*) with reference to salinity, swimming and food consumption. J. Fish. Res. Bd. Can. 29, 67-77
- Murphy, P.G., and J.V. Murphy (1971) Correlations between respiratory and direct uptake of DDT in the mosquito fish (*Gambusia affinis*). Bull. Environ. Contam. Toxicol., 6, 581-588
- Niimi, A.J. and L. Lowe-Jinde (1984) Differential blood cell ratios of rainbow trout (*Salmo gairdneri*) exposed to methylmercury and chlorobenzenes. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 13, 303-311
- Noel-Lambot, F. (1976) Distribution of cadmium, zinc and copper in the mussel (*Mytilus edulis*). Existence of cadmium binding proteins similar to metallothioneins. Experientia, 32/3, 324-326
- Norseth, T., and T.S. Clarkson (1971) Intestinal transport of ^{203}Hg -labelled methylmercury chloride. Arch. Environ. Health 22, 568-577
- Nriagu, J.O. (1979) The biogeochemistry of mercury in the environment. Amsterdam: Elsevier/north Holland
- Offhaus, K. und Mitarbeiter (1972-1975) Untersuchungen über die Belastung bayerischer Gewässer (BRD) mit Quecksilber (Wasser, Wasserpflanzen und Flußsediment). Bay. Bio. Versuchsanstalt, Kaulbachstrasse 37, 8000 München 22
- Olson, K.R., H.L. Bergman, and P.O. Fromm (1973) Uptake of methylmercuric chloride and mercuric chloride by trout: a study of uptake pathways into the whole animal and uptake by erythrocytes in vitro. J. Fish. Res. Bd. Can. 30, 1293-1299
- Olson, K.R., and P.O. Fromm (1973) Mercury uptake and ion distribution in gills of rainbow trout (*Salmo gairdneri*) Tissue scans with an electron microscope. J. Fish. Res. Bd. Can. 30, 10, 1575-1578
- Olson, K.R. (1978) Tissue uptake, subcellular distribution, and metabolism of $^{14}\text{CH}_3\text{HgCl}$ and $^{203}\text{HgCl}$ by rainbow trout (*Salmo gairdneri*). J. Fish. Res. Bd. Can. 35, 381-390

- Radoux, D., and J.M. Bouquegneau (1979) Uptake of mercuric chloride from sea water by *Serranis cabrilla*. Bull. Environ. Contam. Toxicol. 22, 771-778
- Rehwold, R. et al. (1976) Distribution of selected metals in tissue samples of carp (*Cyprinus carpio*). Bull. Environ. Contam. Toxicol., 15, 374-377
- Reinert, R.E., L. Stone, and W.A. Willford (1974) Effect of temperature on accumulation of methylmercuric chloride and p,p' DDT by rainbow trout. J. Fish. Res. Bd. Can., 31, 1649-1652
- Rodgers, D.W., and F.W.H. Beamish (1981) Uptake of waterborne methylmercury by rainbow trout (*Salmo gairdneri*) in relation to oxygen consumption and methylmercury concentration. Can. J. Fish. Aquat. Sci. 38, 1309-1315
- Rucker, R.R. (1968) Effects of mercurial compounds on fish and humans. Bull. Office Inf. Epizoot. 69, 1431-1437
- Rulifson, A.R. (1977) Temperature and water velocity effects on the swimming performance of young-of-the-year striped mullet (*Mugil cephalis*), spot (*Leiostomus xanthurus*), and pinfish (*Lagodon rhomboides*). J. Fish. Res. Bd. Can. 34, 2316-2322
- Saito, M., T. Osona, J. Watnabe, T. Yamamoto, M. Takeuchi, Y. Ohyagi and H. Katsummuma (1961) Studies on Minamata disease. I. establishment of the criteria for etiological research in mice. Jap. J. Exp. Med., 31, 277-290
- Sandermann, H. (1984) Umweltchemikalien in Pflanzen. Umschau, H.4, 115-118
- Sastry, K.V., and P.K. Gupta (1979) The in vivo effect of mercuric chloride on some digestive enzymes of fresh water teleost fish (*Channa punctatus*) Bull. Environmen. Contam. Toxicol. 22, 9-16
- Sastry, K.V., and M.K. Agramal (1979) Mercuric chloride induced enzymological changes in kidney and ovary of teleost fish (*Channa punctatus*). Bull. Environ. Contam. Toxicol., 22, 38-43
- Sastry, K.V., et al. (1979) Comparative study of the effect of acute and chronic mercuric chloride treatment on the activity of a few digestive enzymes of a teleost fish (*Channa punctatus*). Bull. Environ. Contam. Toxicol., 22, 28

- Schäperclaus, W. (1979) Fischkrnakheiten. Akademie Verlag Berlin
- Schiele, R., E.M. Freitag, K.H. Schaller, B. Schellmann und D. Weltle (1981) Untersuchung zur normalen Quecksilberkonzentration menschlicher Organe. zbl. Bakt. hyg., I. Abt. Orig. B 173, 45-62
- Silver, S. (1984) Bacterial transformations of resistance to heavy metals. Changing Metal Cycles and Human Health, ed. J.O. Nriagu, pp. 199-233. Dahlem Konferenzen 1984, Berlin, Heidelberg, New York, Tokio: Springer Verlag
- Simpson, R.E., W. Horwitz, and C.A. Roy (1974) Residue in food and feed. Pest. Monit. J., 7, 127-138
- Skidmore, J.F. (1966) Resistance to zinc sulphate of zebra fish (*Brachydanio rerio*) embryos after removal or rupture of the outer egg membrane. J. Fish. Res. Bd. Can., 23, 1037-1042
- Skidmore, J.F., and P.W.A. Tovell (1972) Toxic effects of zinc sulphate on the gills of rainbow trout. Water Res. 6, 217-230
- Sloan, J.P., J.A.J. Thompson and P.A. Larkin (1974) The biological half-life of inorganic mercury in the dungeness crab (*Cancer magister*). J. Fish. Res. Bd. Can., 31 (10), 1571-1576
- Stoepler, M. (1982) Toxikologische Bedeutung der Schadstoffe Pb, Cd und Hg. Sonderheft: Schadstoffe in Nahrungsketten der AGF
- Suzuki, T., T. Miyanama and Ch. Tamama (1973) The chemical form and bodily distribution of mercury in marine fish. Bull. Environ. Contam. Toxicol., 10, 6, 347-355
- Takahashi, T., T. Kimura, Y. Jato, H. Shiraki and, T. Ukita (1971) The Journal of Hygienic Chemistry, 17 (2), 93-107
- Tautenhahn, A. (1980) Untersuchungen der Parameter für die Einrichtung einer Netzkäfiganlage zur industriemäßigen Karpfenproduktion. Z. Binnenfischerei DDR, 27.Jhrg., H5
- Turekian, K.K. and K.H. Wedepohl (1961) Distribution of the elements in some major units of the earth's crust. Bull. Geol. Soc. Am., 72, 175-192
- Yannai, S., and K. Sachs (1978) Mercury compounds in some eastern Mediterranean fishes, invertebrates, and their habitats. Environ. Res. 16, 408-418

- Yediler, A. (1978) Anreicherungsverhalten von Zink in Binnengewässern. Münchner Beiträge zur Abwasser-/ Fischerei- und Flußbiologie. Bd. 70, R. Oldenbourg Verlag München Wien
- Yediler, A. (1978) Akkumulation von Zink in Pflanzen, Sediment und Fischen, Vergleich Donau-Ammersee. Zeitschr. f. Wasser- und Abwasserforschung, 11.Jhrg., 1
- Yediler, A. und F. Braun (1980) Transport und Speicherung von Quecksilber aus HgCl_2 und $\text{Hg}(\text{NO}_3)_2$ in einer Nahrungskette (Wasser, Sediment, Tubifex, Karpfen). Fisch und Umwelt, 8, Gustav Fischer Verlag, Stuttgart, New York
- Voyer, R.A. (1975) Effect of dissolved oxygen concentration on the acute toxicity of cadmium to the mummichog (*Fundulus heteroclitus*) at various salinities. Trans. Amer. Fish. Soc., 104 (1), 127-134
- Wagner, G.J. and M.M. Trotter (1982) Inducible cadmiumbinding complexes of cabbage and tobacco. Plant Physiol. 69, 804-809
- Weed, R.I., J. Eber, and A. Rothstein (1962) Interaction of mercury with human erythrocytes. J. Gen. Physiol. 45, 395-410
- Weisbart, M. (1973) The distribution and tissue retention of mercury-203 in the goldfish (*Carassius auratus*). Can. J. Zool. 1, 1
- WHO (1980) Consultation to Re-examine the WHO environmental health criteria for mercury. (EHE/EHC/80.22). Geneva
- Windslade, P. (1974) Behavioural studies on the lesser sandeel (*Ammodytes marinus*) III. The effect of temperature on activity. J. Fish. Biol., 6, 587-599
- Winkler, H.A. (1975) Vorkommen von Quecksilber in Gewässern und seine analytische Erfassung. Chemie Ingenieur Technik, 47.Jhrg., 16, 659-694
- Wobeser, G., N.D. Nielsen, and R.H. Dunlop (1970) Mercury concentrations in tissues of fish from the Saskatchewan river. J. Fish. Res. Bd. Can., 27, 830-834

Danksagung

Ich danke Herrn Prof. Dr. J. Jacobs für seine langjährige Betreuung, für die Prüfung der Arbeit und für zahlreiche Diskussionen sowie seine konstruktiven Ratschläge bei der Manuskriptgestaltung. Ebenso gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. M. Ruf für die Überlassung des Arbeitsplatzes. Herrn Dr. F. Braun danke ich für die vielen wertvollen Anregungen und Diskussionsbeiträge. Für die vielen hilfreichen technischen Vorschläge und deren Realisierung danke ich Herrn A. Schöpf von der Werkstatt der Landesanstalt für Wasserforschung (LWF).

Die vorliegende Arbeit konnte nur Dank der Unterstützung durch die LWF und der finanziellen Unterstützung der Deutschen Forschungsgemeinschaft durchgeführt werden.

LEBENS LAUF

- 26.10.1945 in Eskisehir, Türkei, geboren
- 1952-1957 Volksschule Eskisehir
- 1957-1960 Realschule Eskisehir
- 1960-1962 Oberschule Eskisehir
- 1962-1964 Oberschule München
- 1964-1966 Oberschule Ankara
- 1966 Abitur in Ankara
- 1966-1967 Praktikum für das Studium "Textilchemie", München
- 1967/68 Beginn mit dem Biologiestudium an der LMU München
- 1973 Diplomprüfung
- 1973-1975 Diplomarbeit mit dem Thema "Anreicherung von Zink in Pflanzen, Sedimenten und Fischfleisch. Vergleich Donau-Ammersee"
- 1974-1977 Wissenschaftliche Hilfskraft an der Landesanstalt für Wasserforschung, München
- 1977-1981 Wissenschaftliche Angestellte an der Landesanstalt für Wasserforschung, München
- 1979 Beginn der Dissertation an der Landesanstalt für Wasserforschung, München
- 1982-1985 Wissenschaftliche Angestellte in der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH, München

